

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-19946

(P2001-19946A)

(43)公開日 平成13年1月23日(2001.1.23)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームト [*] (参考)
C 0 9 K 11/06	6 3 5	C 0 9 K 11/06	3 K 0 0 7
C 0 7 D 309/34		C 0 7 D 309/34	4 C 0 6 2
405/06		405/06	4 C 0 6 3
409/06		409/06	4 C 0 6 4
413/06		413/06	

審査請求 未請求 請求項の数9 - O L (全 22 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平11-189859

(22)出願日 平成11年7月5日(1999.7.5)

(71)出願人 000222118

東洋インキ製造株式会社

東京都中央区京橋2丁目3番13号

(72)発明者 玉野 美智子

東京都中央区京橋2丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

(72)発明者 鬼久保 俊一

東京都中央区京橋2丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料およびそれを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子

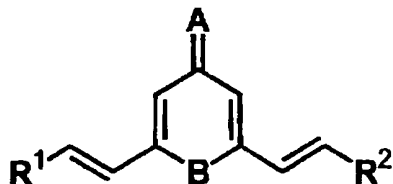
(57)【要約】

【課題】高い発光輝度、発光効率を持ち、繰り返し使用時の安定性の優れた有機EL素子の開発のために、優れた発光能力を有し、耐久性のある有機EL素子用材料を提供する。

【解決手段】下記一般式〔1〕で示される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

一般式〔1〕

【化1】



〔式中、R¹およびR²は、単環基又は縮合多環基を表し、Aは、酸素原子または一般式〔2〕で示されるメレン基を表し、Bは、酸素原子または硫黄原子を表す。〕

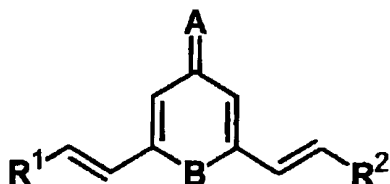
1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式〔1〕で示される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

一般式〔1〕

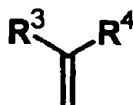
〔化1〕



〔式中、R¹およびR²は、単環基又は縮合多環基を表し、Aは、酸素原子または一般式〔2〕で示されるメチレン基を表し、Bは、酸素原子または硫黄原子を表す。〕

一般式〔2〕

〔化2〕



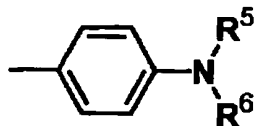
〔式中、R³およびR⁴は、それぞれ独立に、水素原子、シアノ基、ハロゲン原子、アルキルカルボニル基、およびアルコキシカルボニル基からなる群より選ばれる置換基を表すが、同時に水素原子となることはない。〕

【請求項2】 R¹およびR²が、電子供与性であることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

【請求項3】 R¹およびR²が、下記一般式〔3〕で示される部分構造式を含むことを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

一般式〔3〕

〔化3〕



〔式中、R⁵およびR⁶は、水素原子、置換もしくは未置換のアルキル基、又は置換もしくは未置換のアリール基を表し、R⁵とR⁶とは、直接結合、又は2価の置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、酸素原子、硫黄原子、置換もしくは未置換のイミノ基、カルボニル基、チオカルボニル基を介して結合しても良い。〕

【請求項4】 一对の電極間に発光層または発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、いずれかの層が、請求項1〜3いずれか記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を単独もしくは混合物として含有することを

2

特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子、

【請求項5】 一对の電極間に発光層または発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層が請求項1〜3いずれか記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を単独もしくは混合物として含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子、

【請求項6】 さらに、陽極と発光層との間に正孔注入層を形成することを特徴とする請求項4または5記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

【請求項7】 正孔注入層が、アリールアミン誘導体、スタロシアン化合物、およびトリフェニレン誘導体からなる群から選ばれる少なくとも1種を含有する層であることを特徴とする請求項6記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

【請求項8】 さらに、陰極と発光層との間に電子注入層を形成することを特徴とする請求項4ないし7いずれか記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

【請求項9】 電子注入層が、金属錯体化合物または含窒素芳香環化合物を含有する層であることを特徴とする請求項8記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は平面光源や表示に使用される有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子用発光材料および高輝度の発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】有機物質を使用したEL素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般にEL素子は、発光層および該層をはさんだ一对の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入され、電子が発光層において正孔と再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0003】従来の有機EL素子は、無機EL素子に比べて駆動電圧が高く、発光輝度や発光効率も低かった。また、特性劣化も著しく実用化には至っていなかった。近年、10V以下の低電圧で発光する高い蛍光量子効率を持った有機化合物を含有した薄膜を積層した有機EL素子が報告され、関心を集めている(アプライド・フィジクス・レターズ、51巻、913ページ、1987年参照)。この方法は、金属キレート錯体を発光層、アミン系化合物を正孔注入層に使用して、高輝度の緑色発光を得ており、6〜7Vの直流電圧で輝度は数1000cd/m²、最大発光効率は1.5lm/Wを達成して、実用領域に近い性能を持っている。

【0004】しかしながら、現在までの有機EL素子は、構成の改善により発光輝度は改良されているが、未

だ充分な発光輝度は有していない。また、繰り返し使用時の安定性に劣るという大きな問題を持っている。これは、例えば、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体等の金属キレート錯体が、電界発光時に化学的に不安定であり、陰極との密着性も悪く、短時間の発光で大きく劣化していた。以上の理由により、高い発光輝度、発光効率を持ち、繰り返し使用時での安定性の優れた有機EL素子の開発のために、優れた発光能力を有し、耐久性のある有機EL素子用材料の開発が望まれている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、黄色から赤色までの発光色を持ち、発光輝度が高く、長い発光寿命を持つ有機EL素子用材料およびそれをを用いた有機EL素子の提供にある。本発明者らが鋭意検討した結果、一般式[1]で示される置換基を2つ以上有する、単環化合物又は縮合多環化合物からなる有機EL素子用発光材料を、発光層に使用した有機EL素子は黄色から赤色発光を示し、発光輝度および発光効率が高く、発光寿命も優れていることを見いだした。

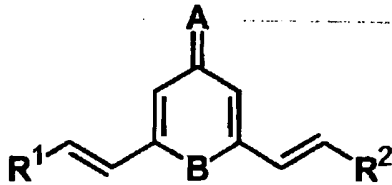
【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、下記一般式[1]で示される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に関する。

一般式[1]

【0007】

【化4】

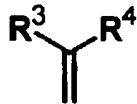


【0008】[式中、R¹およびR²は、単環基又は縮合多環基を表し、Aは、酸素原子または一般式[2]で示されるメチレン基を表し、Bは、酸素原子または硫黄原子を表す。]

一般式[2]

【0009】

【化5】



【0010】[式中、R³およびR⁴は、それぞれ独立に、水素原子、シアノ基、ハロゲン原子、アルキルカルボニル基、およびアルコキシカルボニル基からなる群より選ばれる置換基を表すが、同時に水素原子となることはない。]

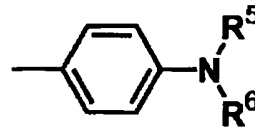
また本発明は、R¹およびR²が、電子供与性であること

を特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料である。また本発明は、R¹およびR²が、下記一般式[3]で示される部分構造式を含むことを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料である。

一般式[3]

【0011】

【化6】



10

【0012】[式中、R⁵およびR⁶は、水素原子、置換もしくは未置換のアルキル基、又は置換もしくは未置換のアリール基を表し、R⁵とR⁶とは、直接結合、又は2価の置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、酸素原子、硫黄原子、置換もしくは未置換のイミノ基、カルボニル基、チオカルボニル基を介して結合しても良い。]

20 また本発明は、一対の電極間に発光層または発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、いずれかの層が、上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を単独もしくは混合物として含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0013】また本発明は、一対の電極間に発光層または発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を単独もしくは混合物として含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。また本発明は、陽極と発光層との間に正孔注入層を形成することを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス素子である。また本発明は、正孔注入層が、アリールアミン誘導体、フタロシアニン化合物、およびトリフェニル誘導体からなる群から選ばれる少なくとも1種を含有する層であることを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0014】また本発明は、陰極と発光層との間に電子注入層を形成することを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス素子である。また本発明は、電子注入層が、金属錯体化合物または含窒素芳香環化合物を含有する層であることを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0015】

【発明の実施の形態】本発明は、一般式[1]で示される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料である。一般式[1]で示される化合物は、Aの部位が電子吸引力であり、置換基のR¹、R²の部位、もしくは一般式[3]で示される部位が電子供与性である為、長波長側

に吸収をしめす。これについては、色彩科学(色素の色と化学構造、丸善株式会社、飛騨満彦著を参照)に、詳しく書かれている。

【0016】ここで電子供与基とは、電子説において共鳴効果や誘起効果により相手から電子を引きつける原子団を言い、これに対して電子を与えるものを電子供与基という(岩波、理化学事典を参照)。例えば、ニトロベンゼンのニトロ基は、代表的な電子吸引基であり、その構造の共鳴効果と、窒素原子の誘起効果とが加わって、ベンゼン核から電子を引きつける。このようなニトロ基の電子吸引性の為に、ニトロベンゼンは、単にニトロ基の極性から期待されるよりは大きな双極子モーメントをもち、近紫外部に強い吸収帯を示し、また、求電子試薬による置換に対しメタ位がオルトまたはパラ位よりも反応しやすくなる等の性質をもつ。他に、ニトロソ基、カルボニル基、カルボキシ基、ニトリル基などが、同様の性質を有する。

【0017】一方、アニリンの $-NH_2$ では、その構造の共鳴効果は電子供与基の働きをもつが、窒素原子の誘起効果は電子吸引基の働きをもつが、全体としてみれば、前の効果が勝るから、アニリンのアミノ基は電子供与基である。フェノールの水酸基についても、事情は全く同じである。電子供与基では、求電子試薬によるベンゼンの置換に際して、オルト-パラ配向性が見られる。他方、フェニル基はニトロベンゼンの場合には電子供与基であるが、アニリンやフェノールの場合には、電子吸引基として働くことになる。ここで、電子供与基の代表例としては、置換もしくは未置換のアミノ基、置換もしくは未置換のアルコキシ基、置換もしくは未置換のアルキル基、アリール基等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0018】本発明における一般式[1]で示される化合物の R^1 および R^2 は、単環基又は縮合多環基を表し、Aは、酸素原子または一般式[2]で示されるメチレン基を表し、Bは、酸素原子または硫黄原子を表す。

【0019】単環基の具体例としては、単環シクロアルキル基、単環アリール基、単環複素環基等がある。単環シクロアルキル基としては、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基等の炭素数4~8のシクロアルキル基がある。単環アリール基としては、フェニル基がある。単環複素環基としては、チエニル基、チオフェニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、ビリジニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、トリアゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、イミダジアゾリル基等がある。

【0020】置換もしくは未置換の縮合多環基としては、縮合多環アリール基、縮合多環複素環基、縮合多環シクロアルキル基等がある。縮合多環アリール基として

は、ナフチル基、アントラニル基、フェナントレニル基、フルオレニル基、アセナフチル基、アズレニル基、ヘプタレニル基、アセナフチレニル基、ビレニル基、ペリレニル基、トリフェニル基等がある。

【0021】縮合多環複素環基としては、インドリル基、キノリル基、イソキノリル基、フトラジニル基、キノキサリル基、キナゾリル基、カルバゾリル基、アクリジニル基、フェナジニル基、フルフリル基、イソチアゾリル基、イソキサゾリル基、フラザニル基、フェノキサジニル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンズイミダゾリル、ベンゾトリアゾリル基、アラニル基等がある。その他の縮合多環基として、1-テトラリル基、2-テトラリル基、テトラヒドロキノリル基等がある。

【0022】さらに、本発明の2つ以上の上記単環基または縮合多環基が、炭素原子、水素原子、酸素原子、窒素原子、硫黄原子からなる非環構造単位を介して連結した基がある。炭素原子、水素原子、酸素原子、窒素原子、硫黄原子からなる非環構造単位は、2個以上であり、直線状または分岐状であり、環を含まないものもある。好ましくは、原子数1~40個である。非環構造単位を例示するならば、酸素原子、硫黄原子の他、アルキル基、アルキレン基、アルキルオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキル基、アミノ基、アルキルアミノ基などの残基が例示出来る。

【0023】単環基または縮合多環基が直接ないしは非環構造単位を介して連結する場合には、単環基または縮合多環基の数は2~10個であり、2カ所以上でそれぞれ結合する場合もあり得る。さらには、単環基と縮合多環基との間の結合もありうる。単環基または縮合多環基は、アルキル基などで置換されても良い。

【0024】具体的には、2個以上の単環基または縮合多環基が直接結合した例としては、ビナフチル、ビキノリン、フラボン、フェニルトリアジン、ビスベンゾチアゾール、ピチオフェン、フェニルベンゾトリアゾール、フェニルベンズイミダゾール、フェニルアクリジン、ビス(ベンゾオキサゾリル)チオフェン、ビス(フェニルオキサゾリル)ベンゼン、ビフェニルフェニルオキサジアゾール、ジフェニルベンゾキノ、ジフェニルイソベンゾフラン、ジフェニルビリジン、スチルベン、ジベンジル、ジフェニルメタン、ビス(フェニルイソアロピル)ベンゼン、ジフェニルフルオレン、ジフェニルヘキサフルオロプロパンの骨格を有する残基が挙げられる。

【0025】また、2個以上の単環基または縮合多環基が非環構造単位を介して結合した例としては、ジベンジルナフチルケトン、ジベンジリデンシクロヘキサノン、ジスチルルナフタレン、(フェニルエチル)ベンジルナフタレン、ジフェニルエーテル、メチルジフェニルアミン、ベンゾフェノン、安息香酸フェニル、ジフェニル尿素、ジフェニルスルフィド、ジフェニルスルホン、ジフ

エノキシビフェニル、ビス(フェノキシフェニル)スルホン、ビス(フェノキシフェニル)アロパン、ジフェノキシベンゼン、エチレングリコールジフェニルエーテル、ネオペンチルグリコールジフェニルエーテル、ジビコリルアミン、ジビリジルアミンの骨格を有する残基が挙げられる。

【0026】 R^1 および R^2 として好ましくは、炭素数10~40個からなる縮合多環基、または、少なくとも1つの炭素数10~40個からなる縮合多環を含む、単環または縮合多環2~10個が直接連結した基である。その具体例は、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、フルオレン、ピレン、クリセン、ナフタセン、ベンタセン、ペリレン、アズレン、コロネン、ルピセン、デカシレン、1,1-ビナフタレン、9,9-ビアントラセン等がある。

【0027】一般式[1]で示される化合物の水素原子が、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のアルコキシ基、置換もしくは未置換のアリール基、置換もしくは未置換のアリールオキシ基、置換もしくは未置換のアルキルチオ基、置換もしくは未置換のアリールチオ基、置換もしくは未置換のアミノ基等に置換されても良い。置換基の具体例は、ハロゲン原子としては弗素、塩素、臭素、ヨウ素、置換もしくは未置換のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ステアリル基、2-フェニルイソプロピル基、トリクロロメチル基、トリフルオロメチル基、ベンジル基、 α -フェノキシベンジル基、 α 、 α -ジメチルベンジル基、 α 、 α -メチルフェニルベンジル基、 α 、 α -ジトリフルオロメチルベンジル基、トリフェニルメチル基、 α -ベンジルオキシベンジル基等がある。

【0028】置換もしくは未置換のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、n-ブトキシ基、t-ブトキシ基、n-オクチルオキシ基、t-オクチルオキシ基、1,1,1-テトラフルオロエトキシ基、フェノキシ基、ベンジルオキシ基、オクチルフェノキシ基等がある。置換もしくは未置換のアリール基としては、フェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、ビフェニル基、4-メチルビフェニル基、4-エチルビフェニル基、4-シクロヘキシルビフェニル基、ターフェニル基、3,5-ジクロロフェニル基、ナフチル基、5-メチルナフチル基、アントリル基、ピレニル基等がある。

【0029】置換もしくは未置換のアミノ基としては、アミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、フェニルメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジベンジルアミノ基等がある。また、隣接する

置換基同士で、それぞれ互いに結合してもよい。

【0030】本発明における一般式[2]で示される部分構造式の R^3 及び R^4 は、それぞれ独立に、水素原子、シアノ基、ハロゲン原子、アルキルカルボニル基、およびアルコキシカルボニル基から選ばれる群より置換基を表すが、同時に水素原子となることはない。ここで、 R^3 及び R^4 の具体例は、ハロゲン原子、アルキルカルボニル基、およびアルコキシカルボニル基のアルキル基は R^1 及び R^2 の説明で例示したものと同様である。更に好ましくは、ジシアノメチレン基、シアノメチレン基、ジ(メチルカルボニル)メチレン基、ジ(メトキシカルボニル)メチレン基等がある。

【0031】本発明における一般式[3]で示される部分構造式の R^5 および R^6 は、 R^1 の及び R^2 で説明で例示したものと同様である。

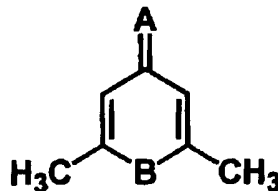
【0032】本発明における化合物は、その分子内で、一般式[1]で示される置換基のAの部位が電子吸引性であり、一般式[3]で示される部位が電子供与性である為、長波長側の吸収を持ち、かつ、個体で強い蛍光を有する為、赤色の蛍光材料として有用である。かつ、ガラス転移点や融点が高い為、電界発光時における有機層中、有機層間もしくは、有機層と金属電極間で発生するジュール熱に対する耐性(耐熱性)が向上するので、有機EL素子材料として使用した場合、高い発光輝度を示し、長時間発光させる際にも有利である。

【0033】本発明の化合物の一般的な合成方法を以下に示す。一般式[4]で示される化合物と、置換もしくは未置換の単環化合物又は置換もしくは未置換の縮合多環化合物化合物のホルミル置換体とを、高沸点アルコール中、塩基を触媒として、脱水縮合させることにより、目的化合物を合成することができる。高沸点溶媒としては、n-プロパノール、iso-プロパノール、n-ブタノール、tert-ブタノール、n-ペンチルアルコール、iso-ペンタノール等がある。塩基としては、ピペリジン、DBU(ジアザビスクロウンデセン)等が挙げられる。以上の合成法は一例であり、特に限定されるものではない。

一般式[4]

【0034】

40 【化7】



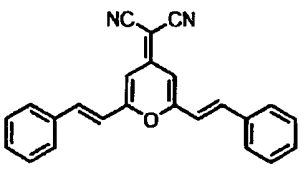
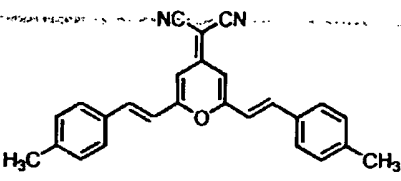
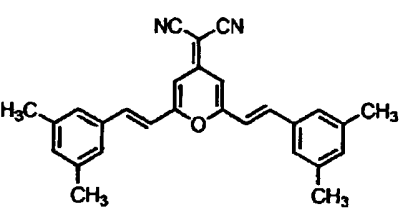
【0035】[式中、AおよびBは、一般式[1]のAおよびBと同じである。]

【0036】以下に、本発明の化合物の代表例を、表1に具体的に例示するが、本発明は、この代表例に限定さ

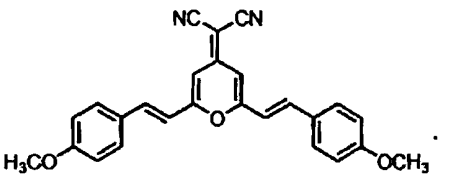
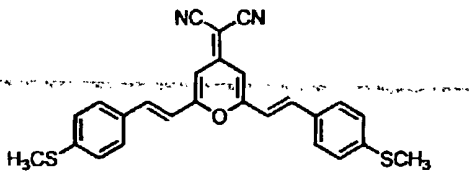
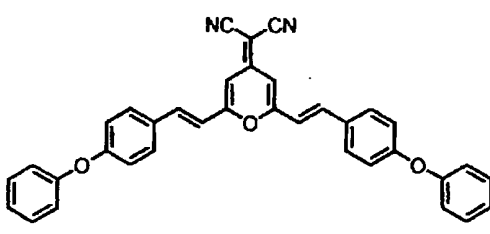
れるものではない。
【0037】

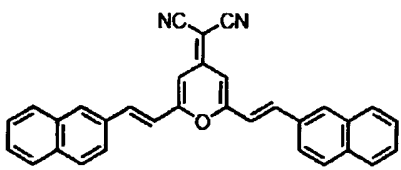
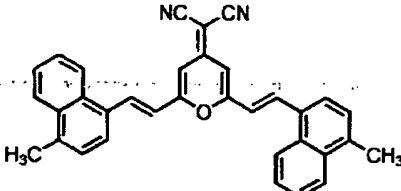
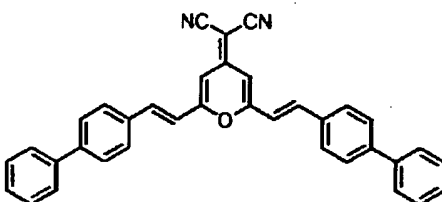
*【表1】

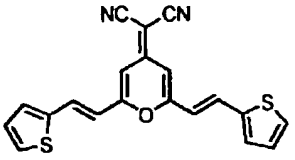
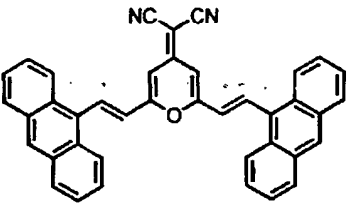
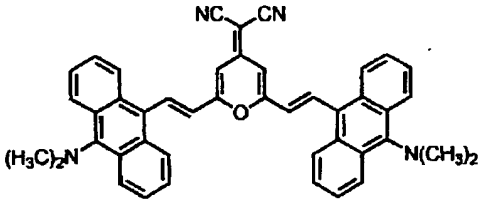
*

化合物	化学構造
(1)	
(2)	
(3)	

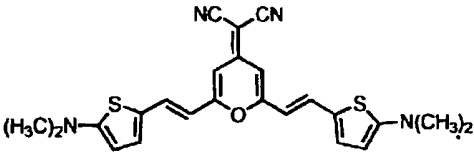
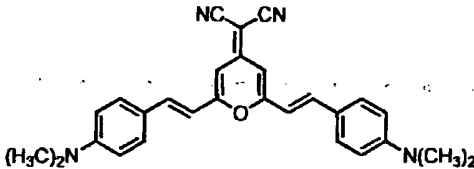
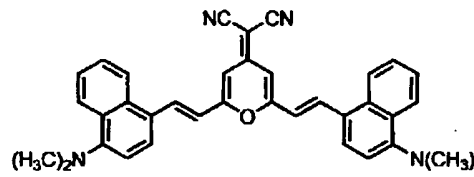
【0038】

化合物	化学構造
(4)	
(5)	
(6)	

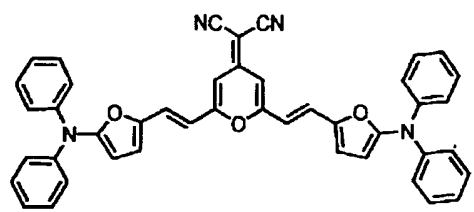
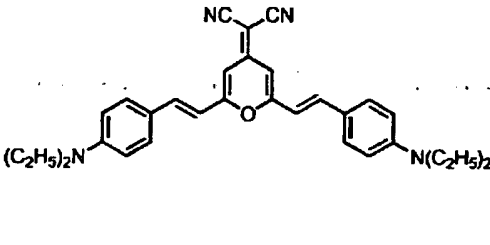
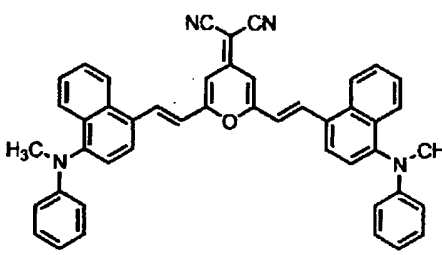
化合物	化学構造
(7)	
(8)	
(9)	

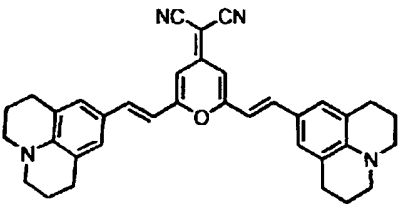
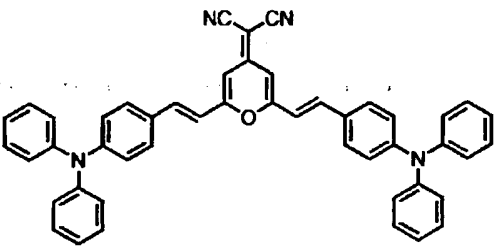
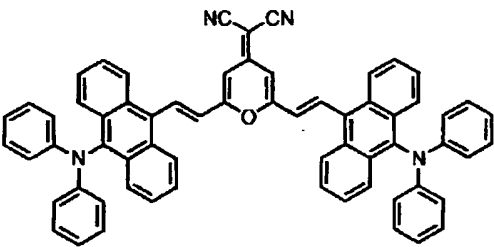
化合物	化学構造
(10)	
(11)	
(12)	

【0041】

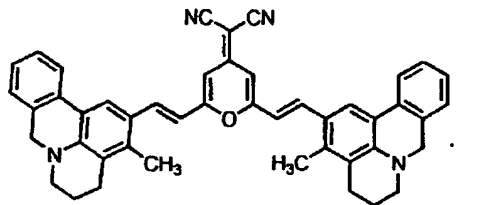
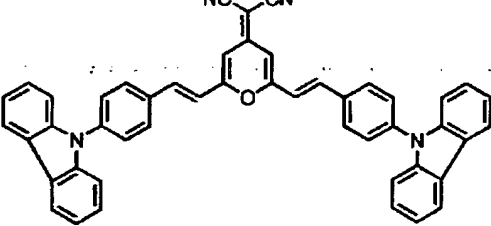
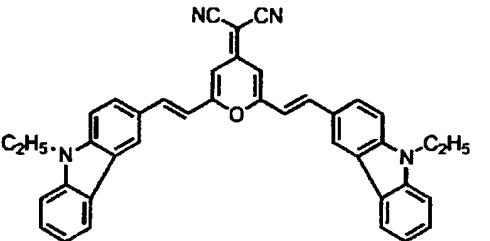
化合物	化学構造
(13)	
(14)	
(15)	

【0042】

化合物	化学構造
(16)	
(17)	
(18)	

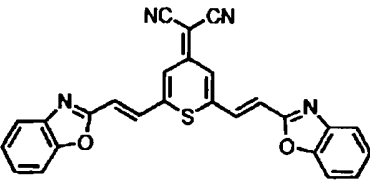
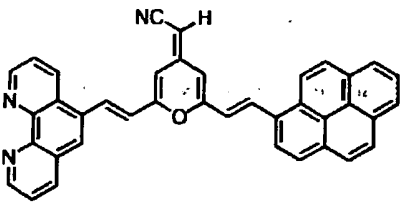
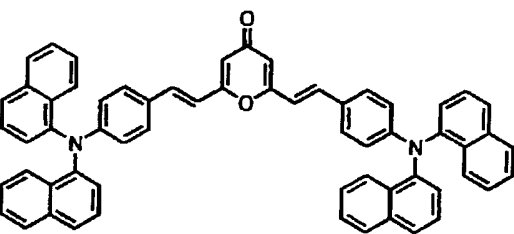
化合物	化 学 構 造
(19)	
(20)	
(21)	

【0044】

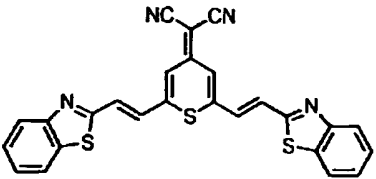
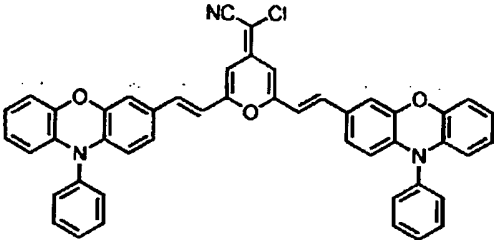
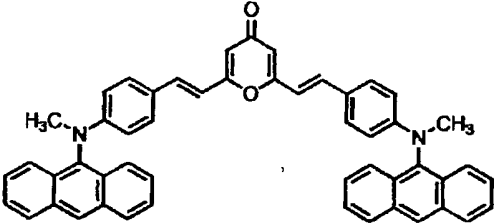
化合物	化学構造
(22)	
(23)	
(24)	

【0045】

25

化合物	化学構造
(25)	
(26)	
(27)	

【0046】

化合物	化学 造
(28)	
(29)	
(30)	

【0047】

化合物	化学構造
(31)	
(32)	
(33)	

【0048】本発明の化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり電場発光性にも優れている。また、金属電極からの優れた電子注入性および電子輸送性を併せて持ち合わせているので、発光材料として有効に使用することができ、更には、他の正孔輸送性材料、電子輸送性材料もしくはドーピング材料を使用してもさしつかえない。

【0049】有機EL素子は、陽極と陰極間に一層もしくは多層の有機薄膜を形成した素子である。一層型の場合、陽極と陰極との間に発光層を設けている。発光層は、発光材料を含有し、それに加えて陽極から注入した正孔、もしくは陰極から注入した電子を発光材料まで輸送させるために、正孔注入材料もしくは電子注入材料を含有しても良い。しかしながら、本発明の発光材料は、極めて高い発光量子効率、高い正孔輸送能力および電子輸送能力を併せ持ち、均一な薄膜を形成することができるので、本発明の発光材料のみで発光層を形成することも可能である。多層型は、(陽極/正孔注入帯域/発光層/陰極)、(陽極/発光層/電子注入帯域/陰極)、(陽極/正孔注入帯域/発光層/電子注入帯域/陰極)の多層構成で積層した有機EL素子がある。本発明の化合物は、高い発光特性を持ち、正孔注入性、正孔輸送特

*性および電子注入性、電子輸送特性をもっているの、
30 発光材料として発光層に使用できる。

【0050】発光層には、必要があれば、本発明の化合物に加えて、さらなる公知の発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料や電子注入材料を使用することもできる。有機EL素子は、多層構造にすることにより、クエンチングによる輝度や寿命の低下を防ぐことができる。必要があれば、発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料や電子注入材料を組み合わせて使用することが出来る。また、ドーピング材料により、発光輝度や発光効率の向上、赤色や青色の発光を得ることもできる。また、正孔注入帯域、発光層、電子注入帯域は、それぞれ二層以上の層構成により形成されても良い。その際には、正孔注入帯域の場合、電極から正孔を注入する層を正孔注入層、正孔注入層から正孔を受け取り発光層まで正孔を輸送する層を正孔輸送層と呼ぶ。同様に、電子注入帯域の場合、電極から電子を注入する層を電子注入層、電子注入層から電子を受け取り発光層まで電子を輸送する層を電子輸送層と呼ぶ。これらの各層は、材料のエネルギー準位、耐熱性、有機層もしくは金属電極との密着性等の各要因により選択されて使用される。

【0051】本発明の化合物と共に発光層に使用できる

発光材料またはドーピング材料としては、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレンおよび色素レーザ用や増白用の蛍光色素等があるが、これらに限定されるものではない。

【0052】本発明の化合物および共に発光層に使用できる上記の化合物の発光層中での存在比率はどれが主成分であってもよい。つまり、上記の化合物および本発明における化合物のそれぞれの組み合わせにより、本発明における化合物は発光層を形成する主材料にも他の主材料中へのドーピング材料にも成り得る。

【0053】正孔注入材料としては、正孔を輸送する能力を持ち、陽極からの正孔注入効果、発光層または発光材料に対して優れた正孔注入効果を有し、発光層で生成した励起子の電子注入帯域または電子注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物が挙げられる。具体的には、フタロシアン誘導体、ナフタロシアン誘導体、ホルフィリン誘導体、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、イミダゾロン、イミダゾールチオン、ピラゾリン、ピラゾロン、テトラヒドロイミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ヒドラゾン、アシルヒドラゾン、ポリアリアルカン、スチルベン、ブタジエン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミン等と、それらの誘導体、およびポリビニルカルバゾール、ポリシラン、導電性高分子等の高分子材料等があるが、これらに限定されるものではない。

【0054】本発明の有機EL素子において使用できる正孔注入材料の中で、さらに効果的な正孔注入材料は、アリールアミン誘導体、フタロシアン化合物ないしはトリフェニレン誘導体である。アリールアミン誘導体の具体例としては、トリフェニルアミン、トリトリルアミン、トリルジフェニルアミン、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ-m-トリル-4, 4'-ビフェニルジアミン、N, N, N', N'-テトラ(p-トリル)-p-フェニレンジアミン、N, N, N', N'-テトラ-p-トリル-4, 4'-ビフェニルジアミン、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(1-ナフチル)-4, 4'-ビフェニルジアミン、N, N'-ジ(4-n-ブ

チルフェニル)-N, N'-ジ-p-トリル-9, 10-フェナントレンジアミン、4, 4', 4"-トリス(N-フェニル-N-m-トリルアミノ)トリフェニルアミン、1, 1-ビス[4-(ジ-p-トリルアミノ)フェニル]シクロヘキサン等、もしくはこれらの芳香族三級アミン骨格を有したオリゴマーもしくはポリマー等があるが、これらに限定されるものではない。

【0055】フタロシアン(Pc)化合物の具体例としては、H₂Pc、CuPc、CoPc、NiPc、Zn₁₀Pc、PdPc、FePc、MnPc、ClAlPc、ClGaPc、ClInPc、ClSnPc、Cl₂SiPc、(HO)AlPc、(HO)GaPc、VO₁₀Pc、TiOPc、MoOPc、GaPc-O-GaPc等のフタロシアン誘導体およびナフタロシアン誘導体等があるが、これらに限定されるものではない。

【0056】トリフェニレン誘導体の具体例としては、ヘキサメトキシトリフェニレン、ヘキサエトキシトリフェニレン、ヘキサヘキシルオキシトリフェニレン、ヘキサベンジルオキシトリフェニレン、トリメチレンジオキシトリフェニレン、トリエチレンジオキシトリフェニレンなどのヘキサアルコキシトリフェニレン類、ヘキサフェノキシトリフェニレン、ヘキサナフチルオキシトリフェニレン、ヘキサビフェニルオキシトリフェニレン、トリフェニレンジオキシトリフェニレンなどのヘキサアリールオキシトリフェニレン類、ヘキサセトキシトリフェニレン、ヘキサベンゾイルオキシトリフェニレンなどのヘキサアシロキシトリフェニレン類等があるが、これらに限定されるものではない。

【0057】電子注入材料としては、電子を輸送する能力を持ち、陰極からの正孔注入効果、発光層または発光材料に対して優れた電子注入効果を有し、発光層で生成した励起子の正孔注入帯域への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物が挙げられる。例えば、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チオピランジオキソド、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等とそれらの誘導体があるが、これらに限定されるものではない。また、正孔注入材料に電子受容物質を、電子注入材料に電子供与性物質を添加することにより増感させることもできる。

【0058】本発明の有機EL素子において、さらに効果的な電子注入材料は、金属錯体化合物もしくは含窒素五員環誘導体である。具体的には、金属錯体化合物としては、8-ヒドロキシキノリナートリチウム、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)亜鉛、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)銅、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)マンガン、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(8-ヒドロキシ

ノリナート) ガリウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)ベリリウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)亜鉛、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)クロロガリウム、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(o-クレゾラート)ガリウム、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(2-ナフトラート)ガリウム、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)フェノラートガリウム、ビス(o-(2-ベンゾオキサゾリル)フェノラート)亜鉛、ビス(o-(2-ベンゾチアゾリル)フェノラート)亜鉛、ビス(o-(2-ベンゾトリアゾリル)フェノラート)亜鉛等があるが、これらに限定されるものではない。

【0059】また、含窒素五員誘導体としては、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールもしくはトリアゾール誘導体が好ましい。具体的には、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-オキサゾール、ジメチルPOPOP、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-チアゾール、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)]ベンゼン、1,4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)-4-tert-ブチルベンゼン]、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1,3,4-チアジアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-チアジアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルチアジアゾリル)]ベンゼン、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1,3,4-トリアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-トリアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルトリアゾリル)]ベンゼン等があるが、これらに限定されるものではない。

【0060】本有機EL素子においては、発光層中に、本発明の化合物の他に、発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料および電子注入材料の少なくとも1種が同一層に含有されてもよい。また、本発明により得られた有機EL素子の、温度、湿度、雰囲気等に対する安定性の向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、シリコンオイル、樹脂等により素子全体を保護することも可能である。

【0061】有機EL素子の陽極に使用される導電性材料としては、4eVより大きな仕事関数を持つものが適しており、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、銀、金、白金、パラジ

ウム等およびそれらの合金、ITO基板、NESA基板に使用される酸化スズ、酸化インジウム等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性樹脂が用いられる。

【0062】陰極に使用される導電性物質としては、4eVより小さな仕事関数を持つものが適しており、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、ルテニウム、マンガン、アルミニウム等およびそれらの合金が用いられるが、これらに限定されるものではない。合金としては、マグネシウム/銀、マグネシウム/インジウム、リチウム/アルミニウム等が代表例として挙げられるが、これらに限定されるものではない。合金の比率は、蒸着源の温度、雰囲気、真空度等により制御され、適切な比率に選択される。陽極および陰極は、必要があれば二層以上の層構成により形成されていても良い。

【0063】有機EL素子では、効率良く発光させるために、少なくとも一方は素子の発光波長領域において充分透明にすることが望ましい。また、基板も透明であることが望ましい。透明電極は、上記の導電性材料を使用して、蒸着やスパッタリング等の方法で所定の透光性が確保するように設定する。発光面の電極は、光透過率を10%以上にすることが望ましい。基板は、機械的、熱的強度を有し、透明性を有するものであれば限定されるものではないが、例示すると、ガラス基板、ポリエチレン板、ポリエチレンテレフタレート板、ポリエーテルサルホン板、ポリプロピレン板等の透明樹脂があげられる。

【0064】本発明に係る有機EL素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法やスピンコーティング、ディッピング、フローコーティング等の湿式成膜法のいずれの方法を適用することができる。膜厚は特に限定されるものではないが、適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり効率が悪くなる。膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても充分な発光輝度が得られない。通常の膜厚は5nmから10μmの範囲が適しているが、10nmから0.2μmの範囲がさらに好ましい。

【0065】湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、エタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサン等の適切な溶媒に溶解または分散させて薄膜を形成するが、その溶媒はいずれであっても良い。また、いずれの有機薄膜層においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切な樹脂や添加剤を使用しても良い。使用の可能な樹脂としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等

の絶縁性樹脂およびそれらの共重合体、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂を挙げることができる。また、添加剤としては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等を挙げることができる。

【0066】以上のように、有機EL素子の発光層に本発明の化合物を用いることにより、発光効率、最大発光輝度等の有機EL素子特性を改良することができた。また、この素子は熱や電流に対して非常に安定であり、さらには低い駆動電圧で実用的に使用可能な発光輝度が得られるため、従来まで大きな問題であった劣化も大幅に低下させることができた。

【0067】本発明の有機EL素子は、壁掛けテレビ等のフラットパネルディスプレイや、平面発光体として、複写機やプリンター等の光源、液晶ディスプレイや計器類等の光源、表示板、標識灯等へ応用が考えられ、その工業的価値は非常に大きい。

【0068】本発明の材料は、有機EL素子、電子写真感光体、光電変換素子、太陽電池、イメージセンサー等の分野においても使用できる。

【0069】

【実施例】以下、本発明を実施例に基づきさらに詳細に説明する。

化合物(14)の合成方法

イソプロピルアルコール50ml中に、4-ジシアノメチレン-2, 6-ジメチル-4H-ピラジン3.2g、4-N, N-ジメチルアミノベンズアルデヒド9g、ビペリジン4.8gを入れ、90℃で10時間加熱撹拌した。その後、100mlのメタノールで希釈し、析出した緑色個体を吸引濾別し、n-ブタノールにより再結晶を2回繰り返して、緑色の板状結晶6gを得た。FD-MSによる分子量分析、NMRスペクトル等の分析により、化合物(14)であることを確認した。この化合物の赤外吸収スペクトル(KBr錠剤法)を図1に示す。

【0070】化合物(20)の合成方法

n-ブチルアルコール50ml中に、4-ジシアノメチレン-2, 6-ジメチル-4H-ピラジン3.44g、4-N, N-ジフェニルアミノベンズアルデヒド16.38g、ビペリジン4.36gを入れ、90℃で10時間加熱撹拌した。その後、100mlのメタノールで希釈し、析出した赤色の個体を吸引濾別し、乾燥して、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製を行ない赤色の蛍光を有する粉末12gを得た。この粉末を酢酸ブチルにより再結晶を行い、赤色板状結晶を8g得た。FD-MSによる分子量分析、NMRスペクトル等の分析により、化合物(20)であることを確認した。この化合物の赤外吸収スペクトル(KBr錠剤法)を図2に示す。

【0071】化合物(24)の合成方法

n-ブチルアルコール50ml中に、4-ジシアノメチ

レン-2, 6-ジメチル-4H-ピラジン6g、N-エチルカルバゾール-3-カルボキシアルデヒド12g、ビペリジン3.8gを入れ、90℃で10時間加熱撹拌した。その後、100mlのメタノールで希釈し、析出した赤色の個体を吸引濾別し、乾燥して、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製を行ない赤色の蛍光を有する粉末2gを得た。FD-MSによる分子量分析、NMRスペクトル等の分析により、化合物(24)であることを確認した。

10 【0072】以下に本発明の化合物を用いた実施例を示す。本例では、電極面積2mm×2mmの有機EL素子の特性を測定した。

【0073】実施例1

洗浄したITO電極付きガラス板上に、発光材料として表1の化合物(14)、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、ポリカーボネート樹脂(帝人化成: パンライトK-1300)を1:2:10の重量比でテトラヒドロフランに溶解させ、スピンコーティング法により膜厚100nmの発光層を得た。その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚150nmの電極を形成して有機EL素子を得た。この素子の発光特性は、直流電圧5Vでの発光輝度60(c d/m²)、最大発光輝度1200(c d/m²)、発光効率0.10(l m/W)の黄色発光が得られた。

【0074】実施例2

洗浄したITO電極付きガラス板上に、N, N'-(3-メチルフェニル)-N, N'-ジフェニル-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン(TPD)を真空蒸着して膜厚20nmの正孔注入層を得た。次いで、化合物(15)を蒸着し膜厚40nmの発光層を作成し、次いでトリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体(Alq3)を蒸着して膜厚30nmの電子注入層を得た。その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は10⁻⁶Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は直流電圧5Vでの発光輝度110(c d/m²)、最大発光輝度5500(c d/m²)、発光効率0.5(l m/W)の赤橙色発光が得られた。

40 【0075】実施例3

洗浄したITO電極付きガラス板上に、化合物(13)を塩化メチレンに溶解させ、スピンコーティング法により膜厚50nmの正孔注入型発光層を得た。次いで、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(1-ナフトラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚40nmの電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。発光層および電子注入層は10⁻⁶Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度120

(cd/m^2)、最大発光輝度6200(cd/m^2)、発光効率0.50(lm/W)の赤橙色発光が得られた。

【0076】実施例4

洗浄したITO電極付きガラス板上に、化合物(17)を真空蒸着して膜厚50nmの正孔注入型発光層を得た。次いで、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚30nmの電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。発光層および電子注入層は 1.0×10^{-6} Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度180(cd/m^2)、最大発光輝度7200(cd/m^2)、発光効率0.6(lm/W)の橙色発光が得られた。

【0077】実施例5~14

洗浄したITO電極付きガラス板上に、4, 4'-ビス*

*[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(α -NPD)を真空蒸着して膜厚30nmの正孔注入層を形成した。次いで、発光材料として表1の化合物を真空蒸着して膜厚30nmの発光層を得た。次いで、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚30nmの電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は 10^{-6} Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子の発光特性を表2に示す。ここでの発光輝度は、直流電圧5V印可時の輝度である。本実施例の有機EL素子は、全て最高輝度10000(cd/m^2)以上の高輝度特性を有し、また、黄色~赤色までの発光色を得ることができた。

【0078】

【表2】

実施例	表1の発光材料	発光輝度 (cd/m^2)	最大発光輝度 (cd/m^2)	発光効率 (lm/W)
5	(4)	200	8000	0.7
6	(6)	250	9200	0.9
7	(7)	260	8500	0.7
8	(9)	200	7000	0.9
9	(11)	250	8500	0.8
10	(12)	350	9500	1.0
11	(14)	350	10000	1.0
12	(15)	380	11000	1.2
13	(19)	420	9000	0.8
14	(20)	390	11000	1.0

上記の発光輝度および発光効率は直流5V印加時の測定値を示す。

【0079】実施例15

洗浄したITO電極付きガラス板上に、4, 4', 4"-トリリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミンを真空蒸着して、膜厚40nmの正孔注入層を得た。次いで、 α -NPDを真空蒸着して、膜厚10nmの第二正孔注入層を得た。さらに、化合物(19)を真空蒸着して、膜厚30nmの発光層を作成し、さらにビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(1-フェノラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚30nmの電子注入層を作成し、その上に、アルミニウムとリチウムを25:1で混合した合金で膜厚150nmの電極を形成して、有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は 10^{-6} Torrの真空中で、

※中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度210(cd/m^2)、最大発光輝度6000(cd/m^2)、発光効率0.5(lm/W)の赤色発光が得られた。

【0080】実施例16

ITO電極と化合物(20)との間に、銅フタロシアニンの膜厚5nmの正孔注入層を設ける以外は、実施例3と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧5Vで発光輝度200(cd/m^2)、最大発光輝度7000(cd/m^2)、発光効率0.6(lm/W)の赤色発光が得られた。

【0081】実施例17

4, 4', 4"-トリリス[N-(3-メチルフェニル)

—N-フェニルアミノ]トリフェニルアミンの代わりに無金属フタロシアニンの膜厚20nmの正孔注入層を設ける以外は、実施例15と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度250 (cd/m^2)、最大発光輝度8000 (cd/m^2)、発光効率0.9 (lm/W)の赤色発光が得られた。

【0082】実施例18

発光層として、化合物(17): α -NPDを1:100の割合で蒸着した膜厚30nmの薄膜を設ける以外は、実施例5と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度320 (cd/m^2)、最大発光輝度9000 (cd/m^2)、発光効率1.0 (lm/W)の赤色発光が得られた。

【0083】実施例19

発光層として、化合物(20):ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)ガリウム錯体を1:100の割合で蒸着した膜厚30nmの薄膜を設ける以外は、実施例5と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度300 (cd/m^2)、最大発光輝度11000 (cd/m^2)、発光効率1.0 (lm/W)の赤色発光が得られた。

【0084】実施例20

発光層として、化合物(14):トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体を1:100の割合で蒸着した膜厚30nmの薄膜を設ける以外は、実施例5と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度350 (cd/m^2)、最大発光輝度11100 (cd/m^2)、発光効率1.3 (lm/W)の赤色発光が得られた。

【0085】実施例21

発光層として、化合物(14):化合物(20)を50:50の割合で蒸着した膜厚30nmの薄膜を設ける以外は、実施例5と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度350 (cd/m^2)、最大発光輝度8100 (cd/m^2)、発光効率0.9 (lm/W)の赤色発光が得られた。

【0086】実施例22

発光層として、 α -NPD:化合物(21)を100:5の割合で蒸着した膜厚30nmの薄膜を設ける以外は、実施例15と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度340 (cd/m^2)、最大発光輝度10500 (cd/m^2)、発光効率1.0 (lm/W)の赤色発光が得られた。

【0087】実施例23

発光層として、化合物(14):4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(DCM)を50:50の割合で蒸着した膜厚30nmの薄膜を設け、さらにトリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体を真空蒸着して膜厚30nmの電子注入層を作成する以外は、実施例15と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度500 (cd/m^2)、最大発光輝度18500 (cd/m^2)、発光効率1.8 (lm/W)の赤色発光が得られた。

【0088】本実施例で示された有機EL素子は、二層型以上の素子構成において、最大発光輝度5000 (cd/m^2)以上の発光が得られ、全て高い発光効率を得ることができた。本実施例で示された有機EL素子について、3 (mA/cm^2)で連続発光させたところ、1000時間以上安定な発光を観測することができた。本発明の有機EL素子は発光効率、発光輝度の向上と長寿命化を達成するものであり、併せて使用される発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料、電子注入材料、増感剤、樹脂、電極材料等および素子作製方法を限定するものではない。

【0089】

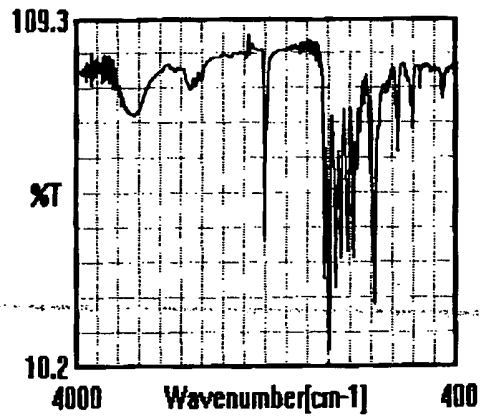
【発明の効果】本発明の有機EL素子材料を発光材料として使用した有機EL素子は、黄色から赤色まで発光し、従来に比べて高い発光効率で高輝度であり、長い発光寿命を持つ有機EL素子を得ることができた。

【図面の簡単な説明】

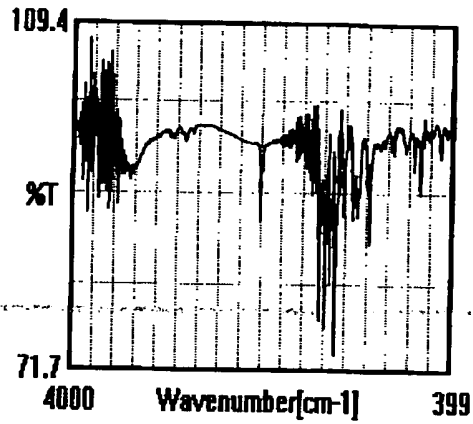
【図1】化合物(14)の赤外線吸収スペクトル図

【図2】化合物(20)の赤外線吸収スペクトル図

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51)Int. Cl. ⁷	識別記号	F I	ターム(参考)
C 0 7 D 417/06		C 0 7 D 417/06	
455/03		455/03	
455/06		455/06	
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B
33/22		33/22	D
			B

Fターム(参考) 3K007 AB00 AB02 AB03 AB04 AB06
 CA01 CB01 DA00 DB03 EB00
 FA01
 4C062 DD02 DD10
 4C063 AA03 BB03 CC78 CC92 CC95
 DD08 DD34 DD52 DD54 DD62
 DD75 DD78
 4C064 AA12 AA13 CC01 DD04 GG07
 GG18

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-019946

(43)Date of publication of application : 23.01.2001

(51)Int.Cl.

C09K 11/06
 C07D309/34
 C07D405/06
 C07D409/06
 C07D413/06
 C07D417/06
 C07D455/03
 C07D455/06
 H05B 33/14
 H05B 33/22

(21)Application number : 11-189859

(71)Applicant : TOYO INK MFG CO LTD

(22)Date of filing : 05.07.1999

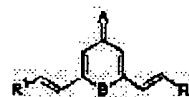
(72)Inventor : TAMANO MICHIKO
 ONIKUBO SHUNICHI

(54) MATERIAL FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ORGANIC
 ELECTROLUMINESCENT ELEMENT USING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject material having a luminescent color from yellow to red, high emission luminance and long emission lifetime and useful in the emission layer of an organic electroluminescent element by desining the material to have a specific structure.

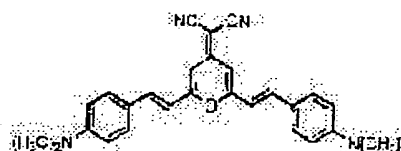
SOLUTION: This material is obtained by designing itself to have a structure of formula I [R1 and R2 are each a monocyclic group or condensed polycyclic group; A is O or a methylene of formula II [R3 and R4 are each H or substituent selected from cyano, a halogen, alkylcarbonyl and alkoxy carbonyl, and both are not H at the same time); B is O or S], (e.g. a compound of formula III). The material of formula I is, for instance, produced by dehydrocondensation between a compound of formula IV and a formyl substitution product of (substituted) monocyclic compound or (substituted) condensed



I



II



III



IV

polycyclic compound in the presence of a catalyst comprising a base (e.g. piperidine) in a high-boiling solvent comprising a high-boiling alcohol (e.g. isopropanol).

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

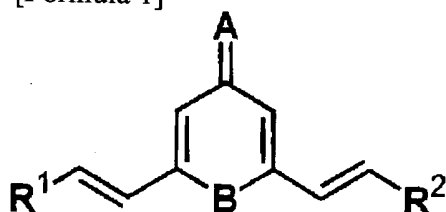
CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The charge of organic electroluminescent-element material shown by the following general formula [1].

General formula [1]

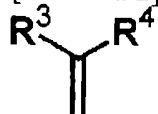
[Formula 1]



[-- R¹ and R² express a monocycle machine or a condensation polycyclic basis among a formula, A expresses the methylene group shown by the oxygen atom or the general formula [2], and B expresses an oxygen atom or a sulfur atom]

General formula [2]

[Formula 2]



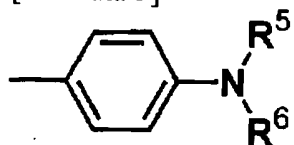
[-- among a formula, independently, although R³ and R⁴ express a hydrogen atom, a cyano group, a halogen atom, an alkyl carbonyl group, and the substituent chosen from the group which consists of an alkoxy carbonyl group, a hydrogen atom and a bird clapper do not have them simultaneously, respectively]

[Claim 2] The charge of organic electroluminescent-element material according to claim 1 to which R¹ and R² are characterized by the electron-donative thing.

[Claim 3] The charge of organic electroluminescent-element material according to claim 1 characterized by R¹ and R² containing the substructure formula shown by the following general formula [3].

General formula [3]

[Formula 3]



[-- among a formula, R⁵ and R⁶ may express the aryl group which is not replaced [the alkyl group which is not replaced / a hydrogen atom, substitution, or /, substitution, or], and they may combine R⁵

and R6 through the imino group which is not replaced [the aryl group which is not replaced / the alkyl group which is not replaced / direct coupling, divalent substitution, or /, substitution, or /, an oxygen atom, a sulfur atom, substitution, or], a carbonyl group, and a thiocarbonyl group]

[Claim 4] the organic electroluminescent element which comes to form the organic compound thin film of two or more layers which contains a luminous layer or a luminous layer in inter-electrode [of a couple] -- setting -- one of layers -- a claim -- the organic electroluminescent element characterized for the charge of organic electroluminescent-element material of a publication by independent or containing as mixture one to 3 either

[Claim 5] the organic electroluminescent element which comes to form the organic compound thin film of two or more layers which contains a luminous layer or a luminous layer in inter-electrode [of a couple] -- setting -- a luminous layer -- a claim -- the organic electroluminescent element characterized for the charge of organic electroluminescent-element material of a publication by independent or containing as mixture one to 3 either

[Claim 6] Furthermore, organic electroluminescent element according to claim 4 or 5 characterized by forming a hole-injection layer between an anode plate and a luminous layer.

[Claim 7] Organic electroluminescent element according to claim 6 characterized by being a layer containing at least one sort chosen from the group which a hole-injection layer becomes from an arylamine derivative, a phthalocyanine compound, and a triphenylene derivative.

[Claim 8] Furthermore, there is no claim 4 characterized by forming an electron-injection layer between cathode and a luminous layer, and it is the organic electroluminescent element of a publication 7 either.

[Claim 9] Organic electroluminescent element according to claim 8 characterized by an electron-injection layer being a layer containing a metal complex compound or a nitrogen-containing ring compound.

[Translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] this invention relates to the luminescent material for the organic (electroluminescence EL) elements and the light emitting device of high brightness which are used for the flat-surface light source or a display.

[0002]

[Description of the Prior Art] Promising ** of the use as a large area full color display device with a cheap solid-state luminescence type is carried out, and, as for the EL element which used the organic substance, many development is performed. Generally the EL element consists of counterelectrodes of the couple the luminous layer and whose layer of this were pinched. Luminescence is a phenomenon which emits energy as a light, in case an electron will be poured in from a cathode side, an electron hole will be poured in from an anode plate side, an electron will recombine with an electron hole in a luminous layer and an energy level will return from a conduction band to a valence band, if electric field are impressed between two electrodes.

[0003] Compared with the inorganic EL element, the conventional organic EL element had high driver voltage, and luminescence brightness and its luminous efficiency were also low. Moreover, property degradation had not resulted in utilization remarkably, either. In recent years, the organic EL element which carried out the laminating of the thin film containing the organic compound with the high fluorescence quantum efficiency which emits light by the low battery not more than 10V is reported, and the interest is attracted (refer to applied FIJIKUSU Letters, 51 volumes, 913 pages, and 1987). This method used the luminous layer and the amine system compound for the hole-injection layer for the metal chelate complex, green luminescence of high brightness has been obtained, several 1000 cd/m² and the maximum luminous efficiency attain 1.5 lm/W by the direct current voltage of 6-7V, and brightness has a performance near a practical use field.

[0004] However, although luminescence brightness is improved for the organic EL element by present by the improvement of composition, it does not have still sufficient luminescence brightness. Moreover, it has the big problem of being inferior to the stability at the time of repeat use. This was chemically [metal chelate complexes, such as for example a tris(8-hydroxyquinolate)aluminium complex, / at the time of an electroluminescence] unstable, and adhesion with cathode was also bad, and it had deteriorated greatly in short-time luminescence. Development of the charge of organic EL-element material which has the luminescence capacity which was excellent for development of the organic EL element which had high luminescence brightness and luminous efficiency and was excellent in the stability in the time of repeat use, and is durable for the above reason is desired.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] this invention has the luminescent color from yellow to red, and its luminescence brightness is high and it is in offer of the organic EL element using the charge of organic EL-element material and it with a long luminescence life. As a result of this invention persons' inquiring wholeheartedly, the organic EL element which used the luminescent material for organic EL

elements which consists of the monocycle compound or condensation polycyclic compound which has two or more substituents shown by the general formula [1] for the luminous layer showed red luminescence from yellow, and luminescence brightness and luminous efficiency were high, and found out that the luminescence life was also excellent.

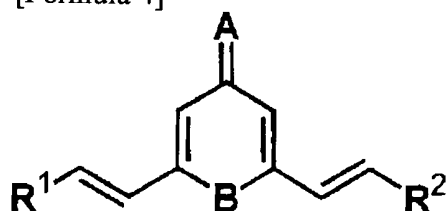
[0006]

[Means for Solving the Problem] this invention relates to the charge of organic electroluminescent-element material shown by the following general formula [1].

General formula [1]

[0007]

[Formula 4]

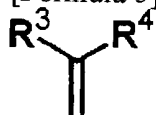


[0008] [-- R1 and R2 express a monocycle machine or a condensation polycyclic basis among a formula, A expresses the methylene group shown by the oxygen atom or the general formula [2], and B expresses an oxygen atom or a sulfur atom]

General formula [2]

[0009]

[Formula 5]



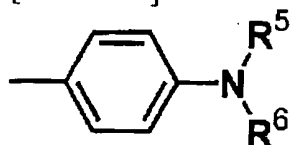
[0010] [-- among a formula, independently, although R3 and R4 express a hydrogen atom, a cyano group, a halogen atom, an alkyl carbonyl group, and the substituent chosen from the group which consists of an alkoxy carbonyl group, a hydrogen atom and a bird clapper do not have them simultaneously, respectively]

Moreover, this invention is the above-mentioned charge of organic electroluminescent-element material to which R1 and R2 are characterized by the electron-donative thing. Moreover, this invention is the above-mentioned charge of organic electroluminescent-element material characterized by R1 and R2 containing the substructure formula shown by the following general formula [3].

General formula [3]

[0011]

[Formula 6]



[0012] [-- among a formula, R5 and R6 may express the aryl group which is not replaced [the alkyl group which is not replaced / a hydrogen atom, substitution, or /, substitution, or], and they may combine R5 and R6 through the imino group which is not replaced [the aryl group which is not replaced / the alkyl group which is not replaced / direct coupling, divalent substitution, or /, substitution, or /, an oxygen atom, a sulfur atom, substitution, or], a carbonyl group, and a thiocarbonyl group] Moreover, in the organic electroluminescent element to which this invention comes to form the organic compound thin film of two or more layers which contains a luminous layer or a luminous layer in inter-electrode [of a couple], one of layers is independent or the organic electroluminescent element

characterized by containing as mixture about the above-mentioned charge of organic electroluminescent-element material.

[0013] Moreover, in the organic electroluminescent element to which this invention comes to form the organic compound thin film of two or more layers which contains a luminous layer or a luminous layer in inter-electrode [of a couple], a luminous layer is independent or the organic electroluminescent element characterized by containing as mixture about the above-mentioned charge of organic electroluminescent-element material. Moreover, this invention is the above-mentioned organic electroluminescent element characterized by forming a hole-injection layer between an anode plate and a luminous layer. Moreover, this invention is the above-mentioned organic electroluminescent element characterized by being a layer containing at least one sort chosen from the group which a hole-injection layer becomes from an arylamine derivative, a phthalocyanine compound, and a triphenylene derivative.

[0014] Moreover, this invention is the above-mentioned organic electroluminescent element characterized by forming an electron-injection layer between cathode and a luminous layer. Moreover, this invention is the above-mentioned organic electroluminescent element characterized by an electron-injection layer being a layer containing a metal complex compound or a nitrogen-containing ring compound.

[0015]

[Embodiments of the Invention] this invention is a charge of organic electroluminescent-element material shown by the general formula [1]. The part of A is electronic suction nature, and since the compound shown by the general formula [1] has the part of R1 and R2 of a substituent, or the electron-donative part shown by the general formula [3], it shows a long wavelength side to absorption. About this, it is written to color science (see the color of coloring matter, the chemical structure, Maruzen Co., Ltd., and the Hida *****) in detail.

[0016] An electron releasing group means the atomic group which draws an electron from a partner according to a resonance effect or the inductive effect in an electronic theory, and calls what gives an electron to this an electron releasing group here (see Iwanami and the physicochemistry encyclopedia). For example, the nitro group of a nitrobenzene is a typical electron withdrawing group, and the resonance effect of the structure and the inductive effect of a nitrogen atom are added, and it draws an electron from a benzene nucleus. It has the big dipole moment, and an absorption band strong against the near-ultraviolet section is shown, and the meta position has properties -- ortho **** becomes easy to react rather than the para position -- to the substitution by the electrophilic reagent rather than a nitrobenzene is only expected from the polarity of a nitro group for the electronic suction nature of such a nitro group. Otherwise, a nitroso group, a carbonyl group, a carboxyl group, a nitrile group, etc. have the same property.

[0017] On the other hand, it is an aniline. - In NH₂, since a front effect will excel if it sees as a whole although the resonance effect of the structure has work of an electron releasing group, and the inductive effect of a nitrogen atom has work of an electron withdrawing group, the amino group of an aniline is an electron releasing group. Also about the hydroxyl group of a phenol, the situation is completely the same. In an electron releasing group, ortho para orientation is seen on the occasion of the substitution of the benzene by the electrophilic reagent. On the other hand, in the case of a nitrobenzene, although a phenyl group is an electron releasing group, in the case of an aniline or a phenol, it will work as an electron withdrawing group. Here, as an example of representation of an electron releasing group, although the alkyl group which is not replaced [the alkoxy group which is not replaced / the amino group which is not replaced / substitution or /, substitution, or /, substitution, or], an aryl group, etc. are mentioned, it is not limited to these.

[0018] R1 and R2 of the compound shown by the general formula [1] in this invention express a monocycle machine or a condensation polycyclic basis, A expresses the methylene group shown by the oxygen atom or the general formula [2], and B expresses an oxygen atom or a sulfur atom.

[0019] As an example of a monocycle machine, there are a monocycle cycloalkyl machine, a monocycle aryl group, a monocycle heterocycle machine, etc. As a monocycle cycloalkyl machine, there is a

cycloalkyl machine of the carbon numbers 4-8, such as a cyclo butyl, a cyclopentyl group, a cyclohexyl machine, a cycloheptyl machine, and a cyclo octyl machine. There is a phenyl group as a monocycle aryl group. As a monocycle heterocycle machine, there are a thienyl group, a thiophenyl machine, a furil machine, a pyrrolyl machine, an imidazolyl machine, a pyrazolyl machine, a pyridinyl group, a pyrazinyl machine, a pyrimidinyl group, a pilus DAJINIRU machine, a thoriadinyl group, a thoria ZORIRU machine, an oxazolyl machine, a thiazolyl machine, an oxadiazolyl machine, a thiadiazolyl machine, an IMIDAJIAZORIRU machine, etc.

[0020] As a condensation polycyclic basis which is not replaced [substitution or], there are a condensation polycyclic aryl group, a condensation polycyclic heterocycle machine, a condensation polycyclic cycloalkyl machine, etc. As a condensation polycyclic aryl group, there are a naphthyl group, an anthranil, a phenan training nil machine, a fluorenyl group, an acenaphtyl machine, an azulenyl machine, a HEPUTARENIRU machine, an ASENAFUCHIRENIRU machine, a pyrenyl machine, a peri RENIRU machine, a TORIFENIRERU machine, etc.

[0021] As a condensation polycyclic heterocycle machine, there are an indolyl machine, a quinolyl machine, an iso quinolyl machine, a phthalazinyl machine, a kino KISARINIRU machine, a cinchona bark ZORINIRU machine, a carbazolyl machine, an acridinyl machine, a FENAJINIRU machine, a furfuryl machine, an iso thiazolyl machine, an isoxazolyl group, a furazanyl group, a phenoxazinyl machine, a benzothiazolyl machine, a benzoxazolyl machine, benzimidazolyl, a benzo thoria ZORIRU machine, a plastic nil machine, etc. As other condensation polycyclic bases, there are 1-tetralyl machine, a 2-tetralyl machine, a tetrahydro quinolyl machine, etc.

[0022] Furthermore, there is a basis which two or more the above-mentioned monocycle machines or condensation polycyclic bases of this invention connected through the non-ring structure unit which consists of a carbon atom, a hydrogen atom, an oxygen atom, a nitrogen atom, and a sulfur atom. The non-ring structure unit which consists of a carbon atom, a hydrogen atom, an oxygen atom, a nitrogen atom, and a sulfur atom is more than divalent, are the shape of a straight line, and a letter of branching, and has some which do not contain a ring. Preferably, they are 1-40 atomic numbers. If a non-ring structure unit is illustrated, residues, such as an alkyl group besides an oxygen atom and a sulfur atom, an alkylene machine, an alkyloxy machine, an alkyl thio machine, a cycloalkyl machine, an amino group, and an alkylamino machine, can be illustrated.

[0023] a monocycle machine or a condensation polycyclic basis is direct -- it is -- carrying out -- when connecting through a non-ring structure unit, the number of a monocycle machine or condensation polycyclic bases is 2-10, and can be combined by two or more places, respectively Furthermore, there may also be combination between a monocycle machine and a condensation polycyclic basis. A monocycle machine or a condensation polycyclic basis may be replaced by the alkyl group etc.

[0024] As an example which two or more monocycle machines or condensation polycyclic bases coupled directly, specifically Binaphthyl, biquinoline, a flavone, phenyl triazine, a screw benzothiazole, Bithiophene, a phenylbenzo triazole, the phenyl benzimidazole, A phenyl acridine, a screw (benzoxazolyl) thiophene, screw (phenyl oxazolyl) benzene, A biphenyl phenyl OKISA diazole, a diphenyl benzoquinone, The residue which has the skeleton of a diphenyl iso benzofuran, a diphenyl pyridine, a stilbene, a dibenzyl, a diphenylmethane, screw (phenyl isopropyl) benzene, a diphenyl fluorene, and a diphenyl hexafluoro propane is mentioned.

[0025] moreover, as an example which two or more monocycle machines or condensation polycyclic bases combined through the non-ring structure unit A dibenzyl naphthyl ketone, a JIBEN zylidene cyclohexanone, JISUCHIRIRU naphthalene, Benzyl naphthalene, a diphenyl ether, a methyl diphenylamine, (Phenylethyl) A benzophenone, a benzoic-acid phenyl, a diphenylurea, a diphenyl sulfide, Diphenylsulfone, a JIFENOKISHI biphenyl, a screw (phenoxyphenyl) sulfone, The residue which has the skeleton of a screw (phenoxyphenyl) propane, JIFENOKISHI benzene, an ethylene glycol diphenyl ether, a neopentyl glycol diphenyl ether, dipicolylamine, and a dipyridyl amine is mentioned.

[0026] The monocycle or 2-10 condensation polycyclics which contain the condensation polycyclic basis which consists of 10-40 carbon numbers, or the condensation many rings which consist of at least one carbon numbers [10-40] preferably as R1 and R2 are the basis connected directly. The example has

naphthalene, anthracene, phenanthrene, fluorene, pyrene, chrysene, naphthacene, pentacene, perylene, azulene, coronene, RUBISEN, deca cyclene, 1, and 1-binaphthalene, 9, and 9-BIANTORASEN etc.

[0027] The hydrogen atom of the compound shown by the general formula [1] may be replaced by the amino group which is not replaced [the aryl thio machine which is not replaced / the alkyl thio machine which is not replaced / the aryloxy group which is not replaced / the aryl group which is not replaced / the alkoxy group which is not replaced / the alkyl group which is not replaced / a halogen atom, a cyano group, substitution, or /, substitution, or /, substitution, or /, substitution, or /, substitution, or /, substitution, or /, substitution As a halogen atom, the example of a substituent as an alkyl group which is not replaced [a fluorine, chlorine, a bromine, iodine, substitution, or] A methyl group, an ethyl group, a propyl group, a butyl, a sec-butyl, a tert-butyl, A pentyl machine, a hexyl machine, a heptyl machine, an octyl machine, a stearyl machine, 2-phenyl isopropyl machine, a TORIKURORO methyl group, a trifluoromethyl machine, There are benzyl, alpha-phenoxy benzyl, alpha, and alpha-dimethyl benzyl, alpha, and alpha-methylphenyl benzyl, alpha, and alpha-ditrifluoromethyl benzyl, a triphenylmethyl machine, an alpha-benzyloxybenzyl machine, etc.

[0028] As an alkoxy group which is not replaced [substitution or], there are a methoxy machine, an ethoxy basis, a propoxy group, an n-butoxy machine, a t-butoxy machine, n-octyloxy machine, t-octyloxy machine, 1 and 1, 1-tetrafluoro ethoxy basis, a phenoxy machine, a benzyloxy machine, an octyl phenoxy machine, etc. As an aryl group which is not replaced [substitution or], there are a phenyl group, 2-methylphenyl machine, 3-methylphenyl machine, 4-methylphenyl machine, 4-ethyl phenyl group, a biphenyl machine, 4-methyl biphenyl machine, 4-ethyl biphenyl machine, 4-cyclohexyl biphenyl machine terphenyl machine, 3, 5-dichlorophenyl machine, a naphthyl group, 5-methyl naphthyl group, an anthryl machine, a pyrenyl machine, etc.

[0029] As an amino group which is not replaced [substitution or], there are the amino group, a dimethylamino machine, a diethylamino machine, a phenyl methylamino machine, a diphenylamino machine, a ditolylamino machine, a dibenzylamino machine, etc. Moreover, you may join together mutually by adjoining substituents, respectively.

[0030] Independently, although R3 and R4 of the substructure formula shown by the general formula [2] in this invention express a substituent from the group chosen from a hydrogen atom, a cyano group, a halogen atom, an alkyl carbonyl group, and an alkoxy carbonyl group, a hydrogen atom and a bird clapper do not have them simultaneously, respectively. It is the same as that of what illustrated the example of R3 and R4 here, and illustrated the alkyl group of a halogen atom, an alkyl carbonyl group, and an alkoxy carbonyl group by explanation of R1 and R2. Furthermore, there are a dicyanomethylene machine, a cyano methylene group, a JI (methyl carbonyl) methylene group, a JI (methoxycarbonyl) methylene group, etc. preferably.

[0031] R5 and R6 of the substructure formula shown by the general formula [3] in this invention are R1, and they are the same as that of what was illustrated by explanation by R2.

[0032] Within the molecule, the part of A of the substituent shown by the general formula [1] is electronic suction nature, and since it has the absorption by the side of long wavelength since the compound in this invention has the electron-donative part shown by the general formula [3], and it has strong fluorescence by the individual, it is useful as a red fluorescence material. And it is advantageous, in case high luminescence brightness is shown and light is made to emit for a long time when it is used as an organic EL-element material, since a glass transition point and the melting point are high and the resistance (thermal resistance) over the Joule's heat generated between the organic layers in the organic layer at the time of an electroluminescence or between an organic layer and a metal electrode improves.

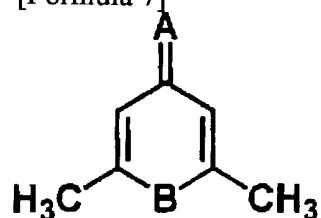
[0033] The general synthetic method of the compound of this invention is shown below. The purpose compound can be compounded by carrying out dehydration condensation by making a base into a catalyst, being able to make as the inside of high-boiling point alcohol the formyl substitution product of the condensation polycyclic compound compound which is not replaced [the compound shown by the general formula [4], the monocycle compound which is not replaced / substitution or /, substitution or]. As a high-boiling point solvent, there are n-propanol, iso-propanol, n-butanol, a tert-butanol, n-pentyl alcohol, an iso-pentanol, etc. A piperidine, DBU (diazabicycloundecen), etc. are mentioned as a base.

The above synthesis method is an example and is not limited especially.

General formula [4]

[0034]

[Formula 7]



[0035] [-- A and B are the same as A and B of a general formula [1] among a formula]

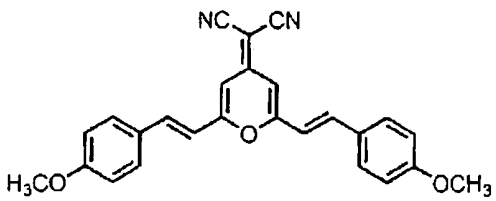
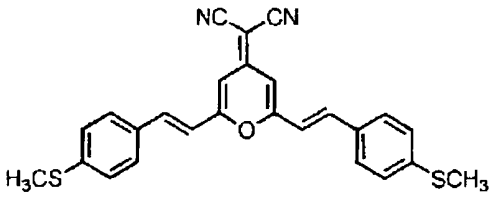
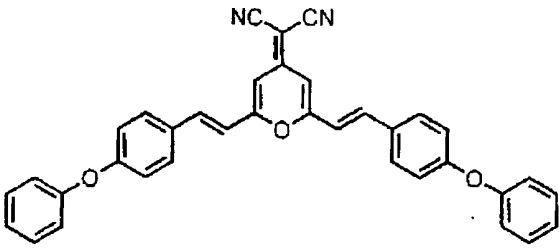
[0036] Although the example of representation of the compound of this invention is concretely illustrated to Table 1 below, this invention is not limited to this example of representation.

[0037]

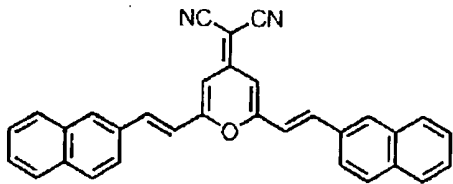
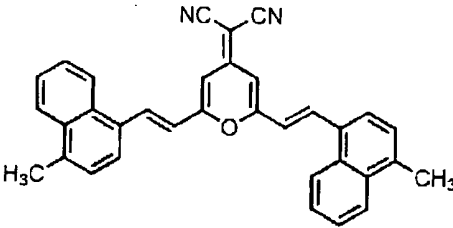
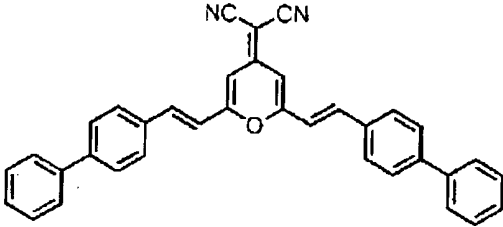
[Table 1]

化合物	化学構造
(1)	
(2)	
(3)	

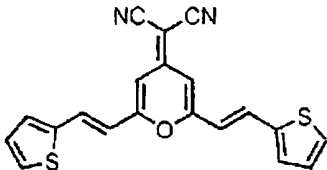
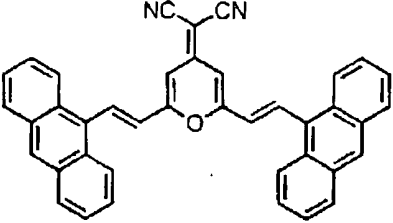
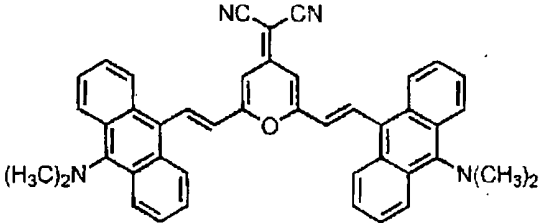
[0038]

化合物	化学构造
(4)	
(5)	
(6)	

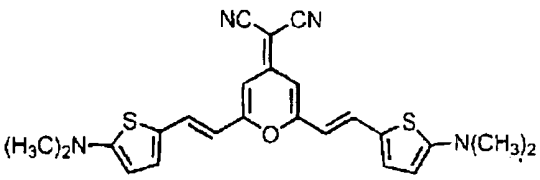
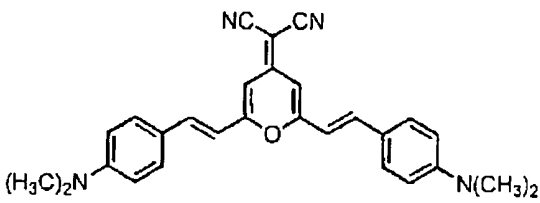
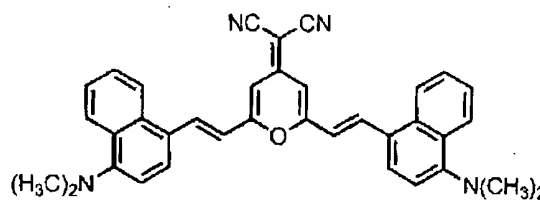
[0039]

化合物	化学构造
(7)	
(8)	
(9)	

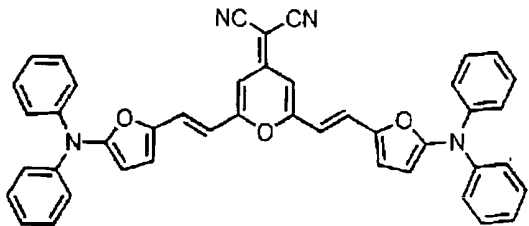
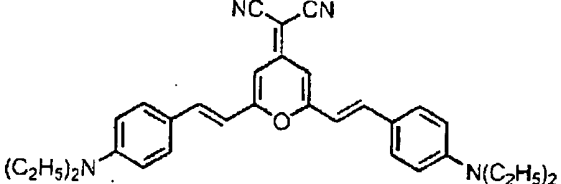
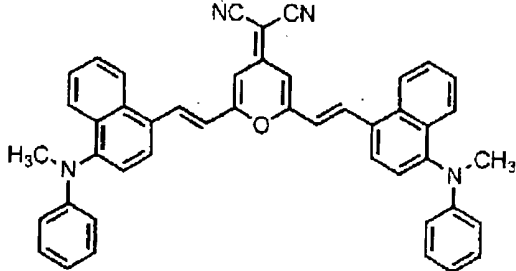
[0040]

化合物	化学构造
(10)	
(11)	
(12)	

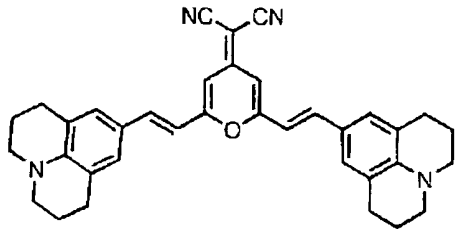
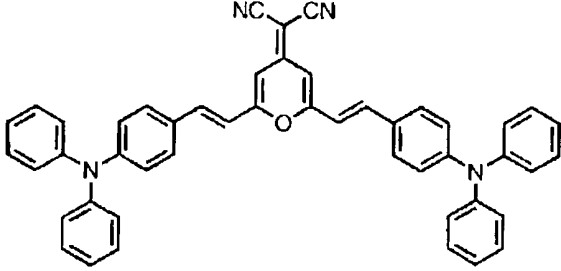
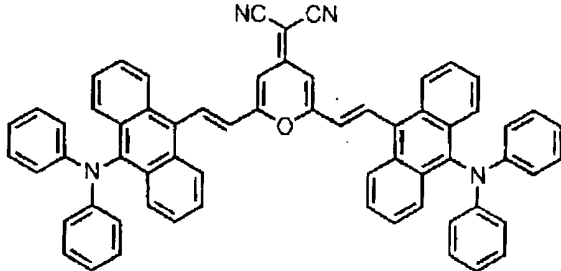
[0041]

化合物	化学构造
(13)	
(14)	
(15)	

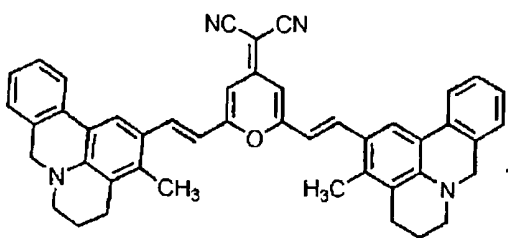
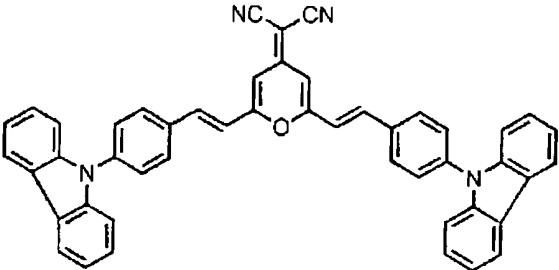
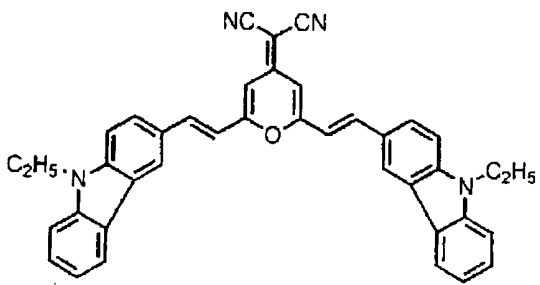
[0042]

化合物	化学构造
(16)	
(17)	
(18)	

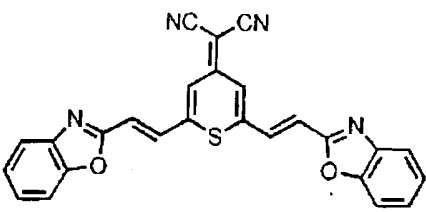
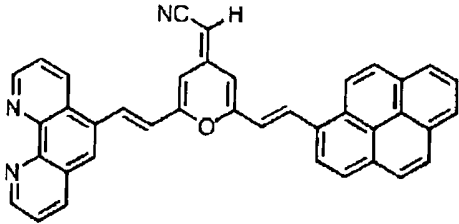
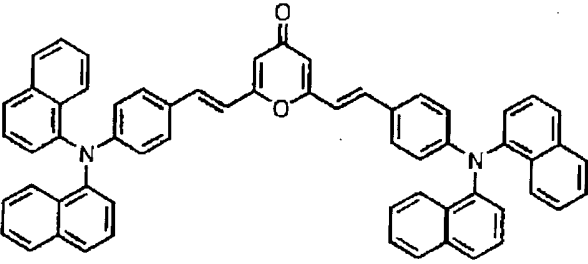
[0043]

化合物	化学构造
(19)	
(20)	
(21)	

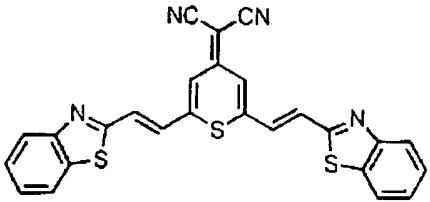
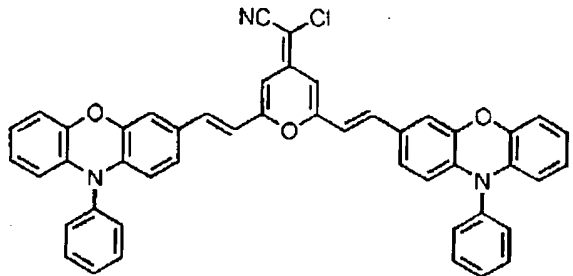
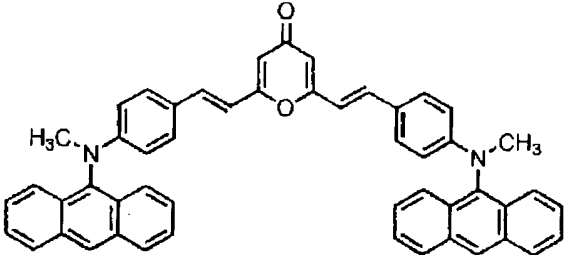
[0044]

化合物	化学造
(22)	
(23)	
(24)	

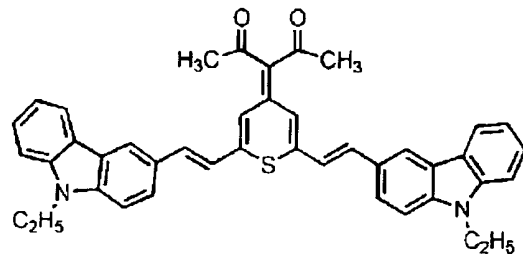
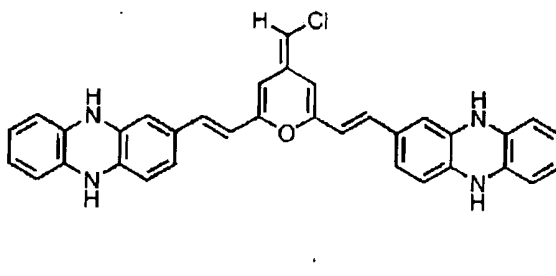
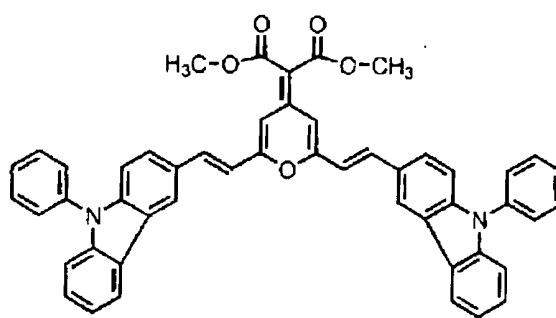
[0045]

化合物	化学构造
(25)	
(26)	
(27)	

[0046]

化合物	化学构造
(28)	
(29)	
(30)	

[0047]

化合物	化学构造
(31)	
(32)	
(33)	

[0048] The compound of this invention is a compound which has strong fluorescence in a solid state, and is excellent also in electroluminescence nature. Moreover, since it has collectively the electron-injection nature which was excellent from the metal electrode, and electronic transportability with it, even if it can use it effectively as a luminescent material and uses the electron hole transportability material, electronic transportability material, or doping material of further others, it does not interfere.

[0049] An organic EL element is an element in which the monostromatic or the multilayer organic thin film was formed between an anode plate and cathode. In the case of the mold, the luminous layer is further prepared between an anode plate and cathode. A luminous layer contains luminescent material, and in order to make the electron hole which was poured in from the anode plate in addition to it, or the electron poured in from cathode convey to luminescent material, it may contain hole-injection material or electron-injection material. However, since the luminescent material of this invention has very high luminescence quantum efficiency, high electron hole transport capacity, and electronic transport capacity and can form a uniform thin film, it can also form a luminous layer only by the luminescent material of this invention. A multilayer type has the organic EL element which carried out the laminating with the multilayer composition of (an anode plate / hole-injection band / luminous layer / cathode), (an anode plate / luminous layer / electron-injection band / cathode), and (an anode plate / hole-injection band / luminous layer / electron-injection band / cathode). Since the compound of this invention has a high luminescence property and has hole-injection nature, electron hole transport properties and electron-injection nature, and electronic transport properties, it can be used for a luminous

layer as a luminescent material.

[0050] If there is need, in addition to the compound of this invention, the further well-known luminescent material, doping material, hole-injection material, and electron-injection material can also be used for a luminous layer. An organic EL element can prevent the fall of the brightness by quenching, or a life by making it multilayer structure. If there is need, it can be used combining luminescent material, doping material, hole-injection material, or electron-injection material. Moreover, improvement in luminescence brightness or luminous efficiency, and red and blue luminescence can also be obtained by doping material. Moreover, a hole-injection band, a luminous layer, and an electron-injection band may be formed of the lamination more than a bilayer, respectively. In the case of a hole-injection band, in that case, the layer which receives an electron hole for the layer which pours in an electron hole from an electrode from a hole-injection layer and a hole-injection layer, and conveys an electron hole to a luminous layer is called electron hole transporting bed. Similarly, in the case of an electron-injection band, the layer which receives an electron for the layer which pours in an electron from an electrode from an electron-injection layer and an electron-injection layer, and conveys an electron to a luminous layer is called electronic transporting bed. These each class is used by each factor, such as adhesion with the energy level of material, thermal resistance, an organic layer, or a metal electrode, choosing it.

[0051] As the luminescent material which can be used for a luminous layer with the compound of this invention, or a doping material An anthracene, naphthalene, a phenanthrene, a pyrène, a tetracene, A coronene, a chrysene, a fluorescein, a perylene, a phtalo perylene, Non [naphthalo perylene and peri non, / phtalo peri non, / naphthalo peri] A diphenyl butadiene, a tetrapod phenyl butadiene, a coumarin, an OKISA diazole, Aldazine, screw benzo KISAZORIN, screw styryl, a pyrazine, a cyclopentadiene, A quinoline metal complex, an amino quinoline metal complex, a benzo quinoline metal complex, Although there are an imine, a diphenylethylene, a vinyl anthracene, a diamino carbazole, a pyran, thiopyran, poly methine, merocyanine, an imidazole chelation oxy-NOIDO compound, a Quinacridone, rubrene and an object for dye laser, a fluorochrome for brightening, etc. It is not limited to these.

[0052] Anything of the rate of an abundance ratio in the inside of the luminous layer of the compound of this invention and the above-mentioned compound which can be used for both luminous layers may be a principal component. That is, the compound in this invention can grow also into the main material which forms a luminous layer also at the DOPINKU material to the inside of other main material with each combination of the above-mentioned compound and the compound in this invention.

[0053] the hole-injection effect which had the capacity to convey an electron hole, as a hole-injection material, and was excellent to the hole-injection effect, the luminous layer, or luminescent material from an anode plate -- having -- a luminous layer -- generation -- the compound which prevented movement into the electron-injection band or electron-injection material of an exciton the bottom, and was excellent in the thin film organization potency force is mentioned Specifically A phthalocyanine derivative, a naphthalocyanine derivative, a porphyrin derivative, An oxazole, an OKISA diazole, a triazole, an imidazole, imidazolone, Imidazole thione, a pyrazoline, a pyrazolone, a tetrahydro imidazole, An oxazole, an OKISA diazole, a hydrazone, an acyl hydrazone, The poly aryl alkane, a stilbene, a butadiene, a benzidine type triphenylamine, a styryl amine type triphenylamine, a diamine type triphenylamine, etc., Although there are polymeric materials, such as those derivatives and a polyvinyl carbazole, polysilane, and a conductive polymer, etc., it is not limited to these.

[0054] A still more effective hole-injection material in the hole-injection material which can be used in the organic EL element of this invention is an arylamine derivative, a phthalocyanine compound, or a triphenylene derivative. As an example of an arylamine derivative, a triphenylamine, a tritolyl amine, A tolyl diphenylamine, N, N'-diphenyl - N, the N'-G m-tolyl -4, a 4'-biphenyl diamine, N, N, N', N'-tetrapod (p-tolyl)-p-phenylene diamine, N, N, N', the N'-tetrapod-p-tolyl -4, a 4'-biphenyl diamine, N, N'-diphenyl - N, N'-JI (1-naphthyl) -4, a 4'-biphenyl diamine, N, N'-JI (4-n-buthylphenyl) - N, the N'-G p-tolyl -9, 10-phenanthrene diamine, Although there is 4, 4', oligomer with these aromatic third class amine frames, such as 4"-tris (N-phenyl-N-m-tolylamino) triphenylamine, 1, and 1-screw [4-(G p-tolylamino) phenyl] cyclohexane, or polymer It is not limited to these.

[0055] As an example of a phthalocyanine (Pc) compound, although there are a phthalocyanine derivative, naphthalocyanine derivatives, etc., such as H₂Pc, CuPc, CoPc, NiPc, ZnPc, PdPc, FePc, MnPc, ClAlPc, ClGaPc, ClInPc, ClSnPc, Cl₂SiPc, and (HO)AlPc, (HO)GaPc, VOPc, TiOPc, MoOPc, and GaPc-O-GaPc, it is not limited to these.

[0056] As an example of a triphenylene derivative, hexamethoxy triphenylene, Hexa ethoxy triphenylene, hexa hexyloxy triphenylene, Hexa benzyloxy triphenylene, trimethylene dioxy triphenylene, Hexa alkoxy triphenylene, such as TORIECHI range oxy-triphenylene Hexa phenoxy triphenylene, hexa naphthylloxy triphenylene, Although there is hexa acyloxy triphenylene, such as hexa aryloxy triphenylene, such as hexa biphenyl oxy-triphenylene and triphenylene dioxy triphenylene, hexa acetoxo triphenylene, and hexa benzoyloxy triphenylene It is not limited to these.

[0057] the electron-injection effect which had the capacity to convey an electron, as an electron-injection material, and was excellent to the hole-injection effect, the luminous layer, or luminescent material from cathode -- having -- a luminous layer -- generation -- the compound which prevented movement to the hole-injection band of an exciton the bottom, and was excellent in the thin film organization potency force is mentioned for example, full -- me -- non, although there are an anthra quinodimethan, diphenodimethan, thiopyran dioxide, an oxazole, an OKISA diazole, a triazole, an imidazole, perylene tetracarboxylic acid, deflection ORENIRIDEN methane, an anthra quinodimethan, anthrones, etc. and those derivatives, it is not limited to these Moreover, sensitization can be carried out by adding the electronic acceptance matter into hole-injection material, and adding the electron-donative matter into electron-injection material.

[0058] In the organic EL element of this invention, a still more effective electron-injection material is a metal complex compound or a nitrogen-containing five membered ring derivative. As a metal complex compound, specifically 8-hydroxyquinolate lithium, Bis(8-hydroxyquinolate)zinc, bis(8-hydroxyquinolate)copper, Screw (8-hydroxyquinolate) manganese, tris(8-hydroxyquinolate) aluminium, Tris (2-methyl-8-hydroxyquinolate) aluminum, A tris (8-hydroxyquinolate) gallium, screw (10-hydroxy BENZO [h] quinolate) beryllium, Screw (10-hydroxy BENZO [h] quinolate) zinc, a screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) chloro gallium, A screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) (o-cresolate) gallium, Screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) (1-naphth RATO) aluminum, A screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) (2-naphth RATO) gallium, A screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) phenolate gallium, Although there are screw (o-(2-benzoxazolyl) phenolate) zinc, screw (o-(2-benzothiazolyl) phenolate) zinc, screw (o-(2-benzo thoria ZORIRU) phenolate) zinc, etc., it is not limited to these.

[0059] Moreover, as a nitrogen-containing 5 member derivative, an oxazole, a thiazole, an OKISA diazole, thiadiazole, or a triazole derivative is desirable. Specifically, it is 2 and 5-screw (1-phenyl) - 1, 3, 4-oxazole, Dimethyl POPOP, 2, 5-screw (1-phenyl) - 1, 3, 4-thiazole, 2 and 5-screw (1-phenyl) - 1, 3, 4-OKISA diazole, and 2-(4'-tert-buthylphenyl)-5-(4"-biphenyl)- 1, 3, and 4-OKISA diazole -- 2, 5-screw (1-naphthyl)-screw [1, 3, 4-OKISA diazole, 1, and 4-] [2- (5-phenyl oxadiazolyl)] benzene, 1, 4-screw [a 2-(5-phenyl oxadiazolyl)-4-tert-butylbenzene], 2-(4'-tert-buthylphenyl)-5-(4"-biphenyl)- 1, 3, and 4-thiadiazole -- 2, 5-screw (1-naphthyl)-screw [1, 3, 4-thiadiazole, 1, and 4-] [2- (5-phenyl thiadiazolyl)] benzene, 2-(4'-tert-buthylphenyl)-5-(4"-biphenyl)-, although there is 1, 3, 4-triazole, 2, and 5-screw (1-naphthyl)-screw [1, 3, 4-triazole, 1, and 4-] [2- (5-phenyl thoria ZORIRU)] benzene etc. It is not limited to these.

[0060] In this organic EL element, at least one sort of luminescent material, doping material, hole-injection material, and electron-injection material other than the compound of this invention may contain in the same layer in a luminous layer. Moreover, it is also possible to prepare a protective layer on the surface of an element for the improvement of stability to the temperature of the organic EL element obtained by this invention, humidity, atmosphere, etc., or to protect the whole element with a silicone oil, a resin, etc.

[0061] What has a bigger work function than 4eV as a conductive material used for the anode plate of an organic EL element is suitable, and, as for metal oxide, such as tin oxide used for those alloys, such as carbon, aluminum, vanadium, iron, cobalt, nickel, a tungsten, silver, gold, platinum, and palladium, and

an ITO substrate, and a NESA substrate, and indium oxide, and a further, organic conductive resin, such as the poly thiophene and polypyrrole, is used.

[0062] Although what has a work function smaller than 4eV as conductive matter used for cathode is suitable and those alloys, such as magnesium, calcium, tin, lead, titanium, an yttrium, a lithium, a ruthenium, manganese, and aluminum, are used, it is not limited to these. As an alloy, although magnesium/silver, magnesium/indium, a lithium/aluminum, etc. are mentioned as an example of representation, it is not limited to these. The ratio of an alloy is controlled by the temperature of the source of vacuum evaporatio, atmosphere, the degree of vacuum, etc., and is chosen as a suitable ratio. As long as an anode plate and cathode have the need, they may be formed of the lamination more than a bilayer.

[0063] In an organic EL element, in order to make light emit efficiently, as for at least one side, it is desirable to make it sufficiently transparent in the luminescence wavelength field of an element. Moreover, it is desirable for a substrate to be also transparent. A transparent electrode uses the above-mentioned conductive material, and it sets it up so that a predetermined translucency may secure by methods, such as vacuum evaporatio and sputtering. As for the electrode of a luminescence side, it is desirable to make a light transmittance 10% or more. Although it is not limited if a substrate has mechanical and thermal intensity and it has transparency, if it illustrates, transparent resins, such as a glass substrate, a polyethylene board, a polyethylene TEREFUTE rate board, a polyether ape phon board, and a polypropylene board, will be raised.

[0064] Formation of each class of the organic EL element concerning this invention can apply which method of the wet forming-membranes methods, such as the dry type forming-membranes methods, such as vacuum deposition, sputtering, plasma, and ion plating, spin coating and dipping, and flow coating. Although especially thickness is not limited, it is necessary to set it as suitable thickness. If thickness is too thick, in order to obtain a fixed optical output, big applied voltage will be needed and efficiency will become bad. If thickness is too thin, even if a pinhole etc. will occur and it will impress electric field, sufficient luminescence brightness is not obtained. The usual thickness has the still more desirable range of 0.2 micrometers from 10nm, although the range of 10 micrometers is suitable from 5nm.

[0065] The solvent may be any, although suitable solvents, such as ethanol, chloroform, a tetrahydrofuran, and a dioxane, are made to dissolve or distribute the material which forms each class in the case of the wet forming-membranes method and a thin film is formed. Moreover, also in which organic thin film layer, you may use a suitable resin and a suitable additive on a membrane formation disposition for pinhole prevention of a film etc. As a possible resin of use, conductive resin, such as photoconductivity resins, such as insulating resins, such as polystyrene, a polycarbonate, a polyarylate, polyester, a polyamide, polyurethane, a polysulfone, a polymethylmethacrylate, poly methyl acrylate, and a cellulose, and those copolymers, Polly N-vinylcarbazole, and polysilane, the poly thiophene, and polypyrrole, can be mentioned. Moreover, an antioxidant, an ultraviolet ray absorbent, a plasticizer, etc. can be mentioned as an additive.

[0066] As mentioned above, organic EL-element properties, such as luminous efficiency and the maximum luminescence brightness, were improvable by using the compound of this invention for the luminous layer of an organic EL element. Moreover, since it was very stable and usable luminescence brightness was further obtained practical by low driver voltage to heat or current, this element was also able to reduce sharply degradation which was a big problem to the former.

[0067] The organic EL element of this invention can consider application as a flat-panel display and flat-surface emitters, such as a flat TV, to the light sources, such as the light sources, such as a copying machine and a printer, a liquid crystal display, and instruments, the plotting board, a beacon light, etc., and the industrial value is very large.

[0068] The material of this invention can be used also in fields, such as an organic EL element, an electrophotography photo conductor, an optoelectric transducer, a solar battery, and image sensors.

[0069]

[Example] Hereafter, this invention is further explained to a detail based on an example.

synthetic method isopropyl alcohol 50ml of a compound (14) -- into inside, 4-dicyanomethylene -2 and

6-dimethyl-4H-pyrazine 3.2g, 4-N, and N-dimethylaminobenzaldehyde 9g and piperidine 4.8g were put, and heating churning was carried out at 90 degrees C for 10 hours. Then, it was diluted with 100ml methanol, the green individual which deposited was carried out the ***** exception, recrystallization was repeated twice by n-butanol, and 6g of green plate crystal was obtained. It checked that it was a compound (14) by analysis of the molecular weight analysis by FD-MS, an NMR spectrum, etc. The infrared absorption spectrum (KBr briquette method) of this compound is shown in drawing 1.

[0070] synthetic method n-butyl alcohol 50ml of a compound (20) -- into inside, 4-dicyanomethylene -2 and 6-dimethyl-4H-pyrazine 3.44g, 4-N, and N-diphenylamino benzaldehyde 16.38g and piperidine 4.36g were put, and heating churning was carried out at 90 degrees C for 10 hours. Then, it was diluted with the 100ml methanol and the individual of the red which deposited was carried out the ***** exception, it dried and 12g of powder which refines with the column chromatography using silica gel, and has red fluorescence was obtained. Butyl acetate performed recrystallization for this powder, and 8g of red plate crystal was obtained. It checked that it was a compound (20) by analysis of the molecular weight analysis by FD-MS, an NMR spectrum, etc. The infrared absorption spectrum (KBr briquette method) of this compound is shown in drawing 2.

[0071] synthetic method n-butyl alcohol 50ml of a compound (24) -- into inside, 4-dicyanomethylene -2 and 6-dimethyl-4H-pyrazine 6g, N-ethyl carbazole-3-carboxy aldehyde 12g, and piperidine 3.8g were put, and heating churning was carried out at 90 degrees C for 10 hours. Then, it was diluted with the 100ml methanol and the individual of the red which deposited was carried out the ***** exception, it dried and 2g of powder which refines with the column chromatography using silica gel, and has red fluorescence was obtained. It checked that it was a compound (24) by analysis of the molecular weight analysis by FD-MS, an NMR spectrum, etc.

[0072] The example which used the compound of this invention for below is shown. In this example, the property of an electrode area 2mmx2mm organic EL element was measured.

[0073] On the glass plate with an ITO electrode washed example 1, it is compound [of Table 1] (14), 2, and 5-screw (1-naphthyl) as a luminescent material. - 1, 3, 4-OKISA diazole, and polycarbonate resin (Teijin Chemicals : panlight K-1300) were dissolved in the tetrahydrofuran by the weight ratio of 1:2:10, and the luminous layer of 100nm of thickness was obtained by the spin coating method. The electrode of 150nm of thickness was formed with the alloy which moreover mixed silver with magnesium by 10:1, and the organic EL element was obtained. As for the luminescence property of this element, yellow luminescence of the luminescence brightness 60 (cd/m²) of direct-current-voltage 5V, the maximum luminescence brightness 1200 (cd/m²), and luminous efficiency 0.10 (lm/W) was obtained.

[0074] On the glass plate with an ITO electrode washed example 2, they are N, N'-(3-methylphenyl)-N, and N'-diphenyl. - Vacuum deposition of 1, the 1'-biphenyl -4, and the 4'-diamine (TPD) was carried out, and the hole-injection layer of 20nm of thickness was obtained. Subsequently, the vacuum evaporation of the compound (15) was carried out, the luminous layer of 40nm of thickness was created, subsequently the vacuum evaporation of the tris(8-hydroxyquinolate)aluminium complex (Alq3) was carried out, and the electron-injection layer of 30nm of thickness was obtained. The electrode of 100nm of thickness was formed with the alloy which moreover mixed silver with magnesium by 10:1, and the organic EL element was obtained. The hole-injection layer and the luminous layer were deposited under the conditions of a substrate temperature room temperature in the vacuum of 10⁻⁶Torr. As for this element, red lamp color luminescence of the luminescence brightness 110 (cd/m²) of direct-current-voltage 5V, the maximum luminescence brightness 5500 (cd/m²), and luminous efficiency 0.5 (lm/W) was obtained.

[0075] On the glass plate with an ITO electrode washed example 3, the compound (13) was dissolved in the methylene chloride and the hole-injection type luminous layer of 50nm of thickness was obtained by the spin coating method. Subsequently, vacuum deposition of the screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) (1-naphthyl RATO) gallium complex was carried out, the electron-injection layer of 40nm of thickness was created, the electrode of 100nm of thickness was formed on it with the alloy which mixed silver with magnesium by 10:1, and the organic EL element was obtained. The luminous

layer and the electron-injection layer were deposited under the conditions of a substrate temperature room temperature in the vacuum of 10⁻⁶Torr. As for this element, red lamp color luminescence of the luminescence brightness 120 (cd/m²) of direct-current-voltage 5V, the maximum luminescence brightness 6200 (cd/m²), and luminous efficiency 0.50 (lm/W) was obtained.

[0076] On the glass plate with an ITO electrode washed example 4, vacuum deposition of the compound (17) was carried out, and the hole-injection type luminous layer of 50nm of thickness was obtained. Subsequently, vacuum deposition of the screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) (phenolate) gallium complex was carried out, the electron-injection layer of 30nm of thickness was created, the electrode of 100nm of thickness was formed on it with the alloy which mixed silver with magnesium by 10:1, and the organic EL element was obtained. The luminous layer and the electron-injection layer were deposited under the conditions of a substrate temperature room temperature in the vacuum of 10⁻⁶Torr. As for this element, orange luminescence of the luminescence brightness 180 (cd/m²) of direct-current-voltage 5V, the maximum luminescence brightness 7200 (cd/m²), and luminous efficiency 0.6 (lm/W) was obtained.

[0077] On the glass plate with an ITO electrode washed example 5-14, vacuum deposition of the 4 and 4' screw [-] [N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] biphenyl (alpha-NPD) was carried out, and the hole-injection layer of 30nm of thickness was formed. Subsequently, vacuum deposition of the compound of Table 1 was carried out as a luminescent material, and the luminous layer of 30nm of thickness was obtained. Subsequently, vacuum deposition of the screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) (phenolate) gallium complex was carried out, the electron-injection layer of 30nm of thickness was created, the electrode of 100nm of thickness was formed on it with the alloy which mixed silver with magnesium by 10:1, and the organic EL element was obtained. The hole-injection layer and the luminous layer were deposited under the conditions of a substrate temperature room temperature in the vacuum of 10⁻⁶Torr. The luminescence property of this element is shown in Table 2. Luminescence brightness here is brightness at the time of direct-current-voltage 5V seal of approval. All the organic EL elements of this example have a high brightness property more than highest brightness 10000 (cd/m²), and were able to obtain the luminescent color to yellow - red.

[0078]

[Table 2]

実施例	表 1 の発光材料	発光輝度 (cd/m ²)	最大発光輝度 (cd/m ²)	発光効率 (lm/W)
5	(4)	200	8000	0.7
6	(6)	250	9200	0.9
7	(7)	260	8500	0.7
8	(9)	200	7000	0.9
9	(11)	250	8500	0.8
10	(12)	350	9500	1.0
11	(14)	350	10000	1.0
12	(15)	380	11000	1.2
13	(19)	420	9000	0.8
14	(20)	390	11000	1.0

上記の発光輝度および発光効率は直流5V印加時の測定値を示す。

[0079] On the glass plate with an ITO electrode washed example 15, vacuum deposition of 4, 4', and the

4"-tris [N-(3-methylphenyl)-N-phenylamino] triphenylamine was carried out, and the hole-injection layer of 40nm of thickness was obtained. Subsequently, vacuum deposition of alpha-NPD was carried out, and the second hole-injection layer of 10nm of thickness was obtained. Furthermore, vacuum deposition of the compound (19) was carried out, the luminous layer of 30nm of thickness was created, vacuum deposition of the screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) (1-phenolate) gallium complex was carried out further, the electron-injection layer of 30nm of thickness was created, the electrode of 150nm of thickness was formed on it with the alloy which mixed aluminum and the lithium by 25:1, and the organic EL element was obtained. The hole-injection layer and the luminous layer were deposited under the conditions of a substrate temperature room temperature in the vacuum of 10-6Torr. As for this element, red luminescence of the luminescence brightness 210 (cd/m²) of direct-current-voltage 5V, the maximum luminescence brightness 6000 (cd/m²), and luminous efficiency 0.5 (lm/W) was obtained.

[0080] The organic EL element was produced by the same method as an example 3 except preparing the hole-injection layer of 5nm of thickness of a copper phthalocyanine between an example 16ITO electrode and a compound (20). As for this element, red luminescence of the luminescence brightness 200 (cd/m²), the maximum luminescence brightness 7000 (cd/m²), and luminous efficiency 0.6 (lm/W) was obtained by direct-current-voltage 5V.

[0081] an example 174, 4', and 4" -- the organic EL element was produced by the same method as an example 15 except preparing the hole-injection layer of 20nm of thickness of a non-metal phthalocyanine instead of - tris [N-(3-methylphenyl)-N-phenylamino] triphenylamine As for this element, red luminescence of the luminescence brightness 250 (cd/m²) of direct-current-voltage 5V, the maximum luminescence brightness 8000 (cd/m²), and luminous efficiency 0.9 (lm/W) was obtained.

[0082] The organic EL element was produced by the same method as an example 5 except preparing the thin film of 30nm of thickness which deposited compound (17):alpha-NPD at a rate of 1:100 as example 18 luminous layer. This element is the luminescence brightness 320 (cd/m²) maximum luminescence brightness of direct-current-voltage 5V. 9000 (cd/m²) and red luminescence of luminous efficiency 1.0 (lm/W) were obtained.

[0083] The organic EL element was produced by the same method as an example 5 except preparing the thin film of 30nm of thickness which deposited the compound (20):screw (2-methyl-8-hydroxyquinolate) (phenolate) gallium complex at a rate of 1:100 as example 19 luminous layer. As for this element, red luminescence of the luminescence brightness 300 (cd/m²) of direct-current-voltage 5V, the maximum luminescence brightness 11000 (cd/m²), and luminous efficiency 1.0 (lm/W) was obtained.

[0084] The organic EL element was produced by the same method as an example 5 except preparing the thin film of 30nm of thickness which deposited compound (14):tris(8-hydroxyquinolate)aluminium ***** at a rate of 1:100 as example 20 luminous layer. This element is the luminescence brightness 350 (cd/m²) maximum luminescence by direct-current-voltage 5V. Red luminescence of brightness 11100 (cd/m²) and luminous efficiency 1.3 (lm/W) is obtained. **.

[0085] The organic EL element was produced by the same method as an example 5 except preparing the thin film of 30nm of thickness which deposited compound (14):compound (20) at a rate of 50:50 as example 21 luminous layer. This element is the luminescence brightness 350 (cd/m²) maximum luminescence by direct-current-voltage 5V. Red luminescence of brightness 8100 (cd/m²) and luminous efficiency 0.9 (lm/W) is obtained. **.

[0086] The organic EL element was produced by the same method as an example 15 except preparing the thin film of 30nm of thickness which deposited alpha-NPD:compound (21) at a rate of 100:5 as example 22 luminous layer. As for this element, red luminescence of the luminescence brightness 340 (cd/m²) maximum luminescence brightness 10500 (cd/m²) of direct-current-voltage 5V and luminous efficiency 1.0 (lm/W) is obtained. **.

[0087] As example 23 luminous layer, the thin film of 30nm of thickness which deposited the compound (14):4-(dicyanomethylene)-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran (DCM) at a rate of 50:50 was prepared, and the organic EL element was produced by the same method as an example 15 except carrying out vacuum deposition of the tris(8-hydroxyquinolate)aluminium complex further, and

creating the electron-injection layer of 30nm of thickness. This element is the luminescence brightness 500 (cd/m²) maximum luminescence by direct-current-voltage 5V. Red luminescence of brightness 18500 (cd/m²) and luminous efficiency 1.8 (lm/W) was obtained.

[0088] In the element composition more than a bilayer type, luminescence more than maximum luminescence brightness 5000 (cd/m²) is obtained, and the organic EL element shown by this example obtains high luminous efficiency altogether. Things were made. About the organic EL element shown by this example, it is 3 (mA/cm²). When carrying out continuation luminescence, luminescence stable for 1000 hours or more was able to be observed. The organic EL element of this invention attains improvement in luminous efficiency and luminescence brightness, and reinforcement, and does not limit the element production methods used collectively, such as luminescent material, doping material, hole-injection material, electron-injection material, a sensitizer, a resin, and an electrode material.

[0089]

[Effect of the Invention] The organic EL element which used an organic EL-element material of this invention as a luminescent material emitted light from yellow to red, is high brightness in high luminous efficiency compared with the former, and was able to obtain the organic EL element with a long luminescence life.

[Translation done.]